(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum Internationales Büro



(43) Internationales Veröffentlichungsdatum
4. Januar 2001 (04.01.2001)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer $WO\ 01/00700\ A2$

(51) Internationale Patentklassifikation : C08G 18/00

(21) Internationales Aktenzeichen: PC

PCT/EP00/05392

(22) Internationales Anmeldedatum:

13. Juni 2000 (13.06.2000)

(25) Einreichungssprache:

Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache:

Deutsch

(30) Angaben zur Priorität:

199 29 011.3

25. Juni 1999 (25.06.1999) DE

199 29 029.6

25. Juni 1999 (25.06.1999) DE

- (71) Anmelder (fur alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von US): BAYER AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE]; D-51368 Leverkusen (DE).
- (71) Anmelder (nur fur US): WALTER, Marie-Hélène, Marie-Ange, Christiane, geb. Dubourg (Erbin des verstorbenen Erfinders) [FR/DE]; Zum Galkhausener Bach 17, D-40764 Langenfeld (DE).
- (72) Erfinder: WALTER, Ulrich (verstorben).
- (72) Erfinder; und
- (75) Erfinder/Anmelder (nur für US): SCHMALSTIEG. Lutz [DE/DE]; Schnurgasse 45. D-50676 Köln (DE).

LEMMERZ, Ralf [DE/DE]; Am Scherfenbrand 85, D-51375 Leverkusen (DE). WILMES, Oswald [DE/DE]; Emund-ter-Meer-Strasse 28, D-51061 Köln (DE).

- (74) Gemeinsamer Vertreter: BAYER AKTIENGE-SELLSCHAFT; D-51368 Leverkusen (DE).
- (81) Bestimmungsstaaten (national): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, ŁU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZW.
- (84) Bestimmungsstaaten (regional): ARIPO-Patent (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI-Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

Veröffentlicht:

Ohne internationalen Recherchenbericht und erneut zu veröffentlichen nach Erhalt des Berichts.

Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes, und der anderen Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regularen Ausgabe der PCT-Gazette verwiesen.

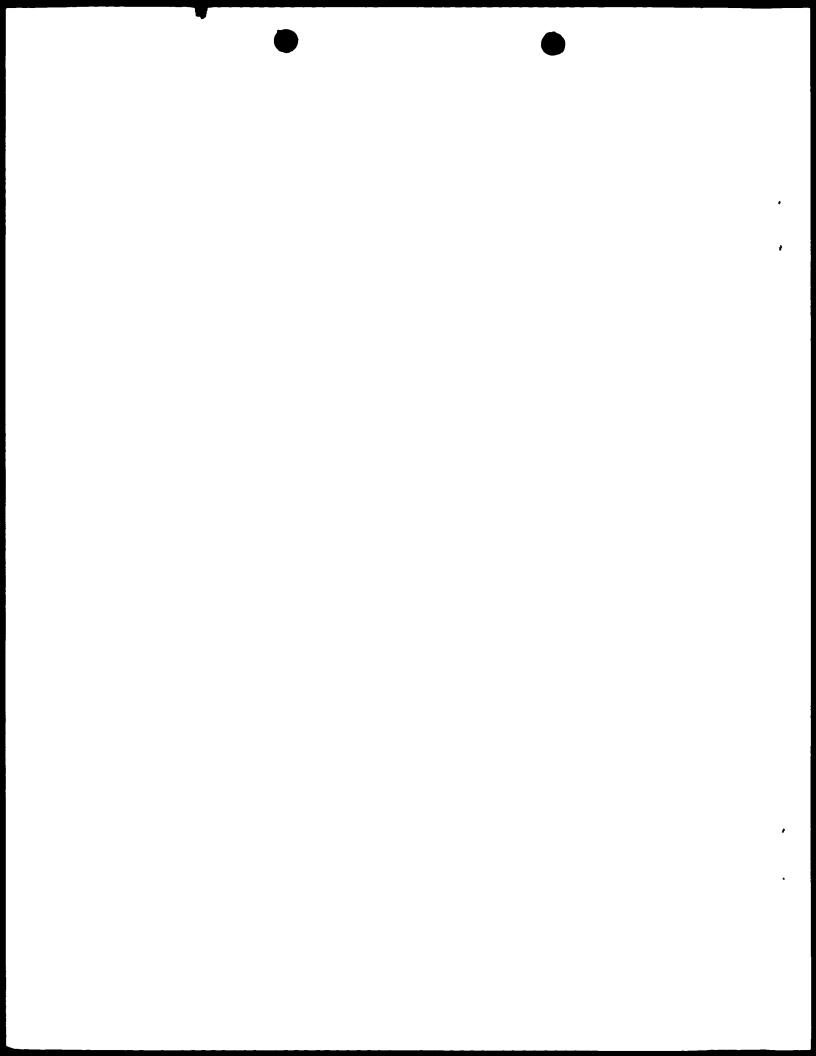
(54) Title: CONDENSATION CROSS-LINKING POLYURETHANE MATERIALS CONTAINING SPECIAL AMINOSILANES. A METHOD FOR THE PRODUCTION THEREOF AND THEIR USE

(54) Bezeichnung: SPEZIELLE AMINOSILANE ENTHALTENDE, KONDENSATIONSVERNETZENDE POLYURETHAN-MASSEN, EIN VERFAHREN ZU IHRER HERSTELLUNG SOWIE IHRE VERWENDUNG

(57) Abstract: The invention relates to silane polycondensation cross-linking polyurethane materials containing at least one alkoxysilane functional polyurethane, at least one basic filler, at least one conversion product of an amino silane with a maleic acid ester or a fumaric acid ester, at least one organometallic compound, and optionally containing additional auxiliary agents. The invention also relates to a method for producing said polyurethane materials and to the use thereof.

(57) Zusammenfassung: Die Erfindung betrifft über eine Silanpolykondensation vernetzende Polyurethanmassen, enthaltend mindestens ein alkoxysilanfunktionelles Polyurethan, mindestens einen basischen Füllstoff, mindestens ein Umsetzungsprodukt eines Aminosilans mit einem Malein- oder Fumarsäureester, mindestens eine metallorganische Verbindung und ggf. weitere Hilfsstoffe, ein Verfahren zu deren Herstellung sowie deren Verwendung.





Spezielle Aminosilane enthaltende, kondensationsvernetzende Polyurethanmassen, ein Verfahren zu ihrer Herstellung sowie ihre Verwendung

Die Erfindung betrifft über eine Silanpolykondensation vernetzende Polyurethanmassen, enthaltend mindestens ein alkoxysilanfunktionelles Polyurethan, mindestens einen basischen Füllstoff, mindestens ein Umsetzungsprodukt eines Aminosilans mit einem Malein- oder Fumarsäureester, mindestens eine metallorganische Verbindung und ggf. weitere Hilfsstoffe, ein Verfahren zu deren Herstellung sowie deren Verwendung.

Alkoxysilanfunktionelle Polyurethane, die über eine Silanpolykondensation vernetzen, gehören zum lange bekannten Stand der Technik. Ein Übersichtsartikel zur Thematik findet sich in "Adhesives Age" 4/1995, Seite 30 ff. (Autoren: Ta-Min Feng, B. A. Waldmann). Derartige Alkoxysilan-terminierte, feuchtigkeitshärtende Einkomponenten-Polyurethane werden in zunehmendem Maße als weichelastische Beschichtungs-, Dichtungs- und Klebemassen im Bauwesen und in der Automobilindustrie verwendet. Bei diesen Anwendungen werden hohe Anforderungen an das Dehn-, Adhäsionsvermögen und an die Aushärtegeschwindigkeit gestellt.

20

5

10

15

Beispielhaft werden derartige Produkte beschrieben in der EP-A-596360, EP-A 831108, der EP-A 807649 oder der EP-A 676403. Bei der Formulierung derartiger Systeme werden typischerweise metallorganische Katalysatoren sowie Haftvermittler vom Aminosilan-Typ mitverwendet. Durch den Zusatz der Aminosilanverbindungen kann es aber oftmals zu Lagerstabilitätsproblemen kommen, insbesondere dann, wenn höhere Anteile an Aminosilanen eingesetzt werden, um eine gute Haftung auf problematischen Untergründen zu erzielen.

30

25

Aufgabe der vorliegenden Erfindung war es daher, Aminosilane enthaltende, über eine Silanpolykondensation vernetzende Polyurethanmassen bereitzustellen, die eine verbesserte Lagerstabilität aufweisen.

Diese Aufgabe konnte mit der Bereitstellung der nachstehend näher beschriebenen kondensationsvernetzenden Polyurethanmassen gelöst werden.

- Gegenstand der Erfindung sind über eine Silanpolykondensation vernetzende Polyurethanmassen, enthaltend
 - A) mindestens ein alkoxysilanfunktionelles Polyurethan mit Endgruppen der allgemeinen Formel (I)

$$R^{1}$$
 $(CH_{2})_{n}$ Si Y $(I),$

in welcher

- 15 R¹ für einen organischen Rest mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen,
 - n für eine ganze Zahl von 2 bis 4 steht

und

20

10

X,Y,Z gleiche oder verschiedene organische Reste darstellen, mit der Maßgabe, daß mindestens einer der Reste eine Alkoxygruppe mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, vorzugsweise eine Methoxy- oder Ethoxygruppe darstellt,

- B) mindestens einen basischen Füllstoff,
- C) mindestens ein Umsetzungsprodukt aus mindestens einem Aminosilan der allgemeinen Formel (II)

$$R^2$$
 N $(CH_2)_n$ Si Y $(II),$

in welcher

5

R² für ein Wasserstoffatom, oder eine Aminoethylgruppe steht und

n, X,Y, Z die bei Formel (I)genannte Bedeutung haben,

mit mindestens einem Malein- oder Fumarsäure(ester) der allgemeinen Formel (III)

$$R_3OOC-CH=CH-COOR_3$$
 (III),

in welcher

R₃ für eine Alkylgruppe mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen steht,

E) mindestens eine metallorganische Verbindung und

20

25

F) ggf. weitere Hilfsstoffe.

Der Erfindung liegt die überraschende Beobachtung zugrunde, daß die anstelle der üblicherweise als Haftvermittler eingesetzten Aminosilane erfindungsgemäß eingesetzten Addukte von Aminosilanen mit Malein- oder Fumarsäureestern verbesserte mechanische Eigenschaften und eine verbesserte Lagerstabilität bewirken.

Die erfindungsgemäß als Komponente C) einzusetzenden Umsetzungsprodukte aus Malein- bzw. Fumarsäureestern und Aminosilanen sind prinzipiell bekannt und wer-

den beispielhaft beschrieben in der EP-A 596360 oder der EP-A 831108. Gemäß der Lehre dieser Veröffentlichungen werden die Umsetzungsprodukte von Malein- bzw. Fumarsäureestern mit Aminosilanen zur Umsetzung mit Isocyanatprepolymeren eingesetzt. Die Verwendung dieser Produkte als Additiv zur Verbesserung der mechanischen Eigenschaften und zur Verbesserung der Haftung von über Silanpolykondensation vernetzenden Polyurethanen ist bisher nicht bekannt.

-4-

Die als Komponente A) erfindungsgemäß einzusetzenden Alkoxysilan-Endgruppen aufweisenden Polyurethane sind prinzipiell bekannt und werden hergestellt durch Umsetzung langkettiger, vorzugsweise linearer NCO-Prepolymere mit aminofunktionellen Silanen der allgemeinen Strukturformel (II)

$$R^{1}$$
 $(CH_{2})_{n}$
 X
 Si
 Y
 $(II),$

wobei R¹ für einen organischen Rest mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen, vorzugsweise eine Phenylgruppe oder besonders bevorzugt einen Rest der allgemeinen Sturkturformel (IIb) steht,

$$COOR_4$$
 $HC--CH_2$ (IIb),

20

25

5

10

wobei R₄ eine Alkylgruppe mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen steht. In der obengenannten Strukturformel steht n für eine ganze Zahl von 2 bis 4, vorzugsweise 3.

X, Y, Z bedeuten in der obengenannten Strukturformel gleiche oder verschiedene organische Reste, mit der Maßgabe, daß mindestens einer der Reste eine Alkoxygruppe mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen darstellt. Vorzugsweise ist mindestens einer

WO 01/00700 PCT/EP00/05392

der Reste eine Methoxy- oder Ethoxygruppe. Besonders bevorzugt steht X, Y und Z für jeweils eine Methoxygruppe.

- 5 -

Beispiele für geeignete aminofunktionelle Silane gemäß Strukturformel (I) sind N-Methyl-3-aminopropyltrimethoxysilan. N-Methyl-3-aminopropyltriethoxysilan, N-Butyl-3-aminopropyltrimethoxysilan. Vorzugsweise einsetzbar ist N-Phenyl-3-aminopropyltrimethoxysilan. Besonders bevorzugt einsetzbar sind die in der EP-A 596360 beschriebenen Asparaginsäureester wie sie durch Umsetzung von Aminosilanen der allgemeinen Strukturformel (II) mit Malein- oder Fumarsäureestern der Formel (III) entstehen.

5

10

15

20

25

Zur Herstellung der Alkoxysilan-Endgruppen aufweisenden Polyurethane A) einsetzbare NCO-Prepolymere werden in bekannter Weise durch Umsetzung von Polyetherpolyolen vorzugsweise Polyetherdiolen mit Diisocyanaten hergestellt und weisen einen NCO-Gehalt zwischen 0,4 und 4 % auf.

Als basische Füllstoffe B) einsetzbar sind gefällte oder gemahlene Kreiden, Metalloxide, -sulfate, -silicate, -hydroxyde, -carbonate und -hydrogencarbonate. Weitere Füllstoffe sind z. B. verstärkende und nichtverstärkende Füllstoffe, wie z. B. pyrogene oder gefällte Kieselsäuren, Ruß oder Quarzmehl. Sowohl die basischen Füllstoffe als auch die weiteren verstärkenden oder nichtverstärkenden Füllstoffe können gegebenenfalls oberflächen-modifiziert sein. Besonders bevorzugt einsetzbar sind als basische Füllstoffe B) gefällte oder gemahlene Kreiden sowie pyrogene Kieselsäuren. Bei der Komponente B) kann es sich selbstverständlich auch um Gemische von Füllstoffen handeln.

Als Komponente C) werden Umsetzungsprodukte von Aminosilanverbindungen der allgemeinen Strukturformel (II)

WO 01/00700 PCT/EP00/05392

$$R^2$$
 $(CH_2)_n$
 Si
 Y
(II),

in welcher

5 R², X, Y, Z und n die oben angegebene Bedeutung haten,

mit Malein- oder Fumarsäure(estern) der allgemeinen Formel (III)

$$R_3OOC-CH=CH-COOR_3$$
 (III)

10

in welcher

R₃ für eine Alkylgruppe mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen steht,

15

20

25

eingesetzt.

Beispiele für einsetzbare Aminosilanverbindungen der Formel (II) sind 3-Aminopropyltrimethoxysilan, 3-Aminopropyltriethoxysilan, N-Aminoethyl-3-aminopropyltriethoxysilan, 3-Aminopropyl-methyldiethoxysilan und N-Aminoethyl-3-aminopropylmethyldimethoxysilan.

In der Formel (III) steht R₃ für einen linearen oder verzweigten aliphatischen Kohlenwasserstoffrest mit maximal 12 Kohlenstoffatomen. Beispiele für geeignete Malein- bzw. Fumarsäureester sind Maleinsäurediethylester, Maleinsäuredimethylester, Maleinsäurediotylester, Fumarsäurediethylester, Fumarsäurediotylester.

Für den Fall, daß als Aminosilane Produkte eingesetzt werden in denen gemäß Formel (II) R₂ ein Wasserstoffatom bedeutet, entstehen bei der Umsetzung mit den Malein- bzw. Fumarsäureestern gemäß der Lehre der EP-A 596360 Asparaginsäureester der allgemeinen Strukturformel (IV)

5

$$R_3OOC$$
 CH
 $(CH_2)_n$
 Z
 (IV)

in welcher

10 R³, X, Y, Z und n die bei den Formeln (II) und (III) angegebene Bedeutung haben.

Für den besonders bevorzugten Fall, daß als Aminosilane der Formel (II) Produkte eingesetzt werden, in denen R_2 eine Aminoethylgruppe bedeutet, entstehen durch Cyclokondensationsreaktion Piperazinonderivate der allgemeinen Formel (V)

15

$$\begin{array}{c|c} COOR_3 \\ \hline \\ HN \\ \hline \\ N \\ \hline \\ (CH_2)_n \\ \hline \\ Si-X \\ Z \end{array} \qquad (V),$$

in welcher

20 R₃, X, Y, Z und n die bei Formel (IV) angegebene Bedeutung haben.

WO 01/00700 PCT/EP00/05392

- 8 -

Als Komponente E) können alle metallorganischen Katalysatoren eingesetzt werden, die bekanntermaßen die Silanpolykondensation fördern. Dies sind insbesondere Verbindungen des Zinns und des Titans. Bevorzugte Zinnverbindungen sind beispielsweise Dibutylzinndilaurat, Dibutylzinndiacetat und Dioctylzinnmaleat, Zinn(II)octoat oder Dibutylzinn-bis-acetoacetonat. Bevorzugte Titanverbindungen sind beispielsweise Alkyltitanate, wie Tetraisopropyltitanat, Tetrabutyltitanat und chelatisierte Titanverbindungen, wie Diisobutyl-bisacetessigsäureethylester-titanat. Besonders bevorzugt wird Dibutylzinn-bis-acetoacetonat als Komponente E) eingesetzt.

10

25

30

5

Zusätze und Hilfsstoffe F) im Sinne der Erfindung seien genannt: Trockenmittel, Weichmacher, andere als die unter D) genannten Haftmittel, Thixotropiermittel, Lichtschutzmittel, Pigmente und Schutzmittel, z.B. Fungizide.

Als Trockenmittel seien insbesondere Alkoxysilylverbindungen genannt wie Vinyltrimethoxysilan, Methyltrimethoxysilan, i-Butyltrimethoxysilan, Hexadecyltrimethoxysilan. Als Weichmacher seien beispielhaft Phtalsäureester, Adipinsäureester, Alkylsulfonsäureester des Phenols oder Phosphorsäureester genannt. Als Thixotropiermittel seien beispielhaft Polyamide, hydrierte Ricinusöl-Folgeprodukte oder auch Polyvinylchlorid genannt. Als Haftvermittler können zusätzlich zu den unter C) genannten Verbindungen Aminosilane der bekannten Art, Epoxysilane und/oder Mercaptosilane eingesetzt werden.

Die erfindungsgemäßen Polyurethanmassen bestehen vorzugsweise aus 30 bis 80 Gew% an Komponente A), 10 bis 50 Gew% an Komponente B), 0,5 bis 3 Gew% an Komponente C), 0,02 bis 1 Gew% an Komponente D) sowie 0 bis 40 Gew% an Komponente F).

Gegenstand der vorliegenden Erfindung ist auch ein Verfahren zur Herstellung der erfindungsgemäßen kondensationsvernetzenden Polyurethanmassen. Beim erfindungsgemäßen Verfahrens wird die Komponente C) in einem separaten Reaktionsge-

fäß hergestellt, durch Umsetzung der Aminosilane mit den Malein- bzw. Fumarsäureestern analog der Lehre der EP-A 596360 im Temperaturbereich von 0 bis 100 °C. Die Komponenten A), B), D) sowie gegebenenfalls E) werden unter Ausschluß von Feuchtigkeit vermischt und anschließend mit der Komponente C) versetzt.

5

In einer bevorzugten Ausführungsform des erfindungsgemäßen Verfahrens wird die erfindungsgemäß einsetzbare Komponente C) in situ erzeugt. Bei dieser Verfahrensweise werden die Komponenten A), B), D) sowie gegebenenfalls E) zusammen mit den zur Herstellung der Komponente C) einsetzbaren Malein- bzw. Fumarsäureestern unter Ausschluß von Feuchtigkeit vermischt und anschließend mit den erfindungsgemäß zur Herstellung der Komponente C) einsetzbaren Aminosilanen versetzt.

10

Gegenstand der vorliegenden Erfindung ist auch die Verwendung der erfindungsgemäß als Komponente C) einsetzbaren Umsetzungsprodukte von Aminosilanen und Malein- und Fumarsäureestern als Additiv in kondensationsvernetzenden Polyurethanmassen.

15

Gegenstand der vorliegenden Erfindung ist weiterhin die Verwendung der erfindungsgemäßen kondensationsvernetzenden Polyurethanmassen als Dichtstoff, Kleboder Beschichtungsmaterial.

20

Die erfindungsgemäßen kondensationsvernetzenden Polyurethanmassen zeigen einerseits eine schnelle Aushärtung mit Hautbildungszeiten zwischen 15 und 120 Minuten, besitzen aber andererseits eine hervorragende Lagerstabilität im Temperaturbereich bis zu 60°C.

25

30

Die vernetzten Polymere zeigen verbesserte mechanische Eigenschaften insbesondere eine verbesserte Reißdehnung im Vergleich zu analogen Systemen, die konventionelle Aminosilane enthalten. Außerdem zeichnen sich die erfindungsgemäßen Polyurethanmassen durch hervoragende Haftung insbesondere Naßhaftung auf allen

WO 01/00700 PCT/EP00/05392 - 10 -

erdenklichen Substraten wie beispielsweise Metall, Keramik, Kunststoff, Stein oder Beton aus.

Beispiele

Herstellung eines Alkoxysilyl-Endgruppen aufweisenden Polyurethans A1)

2000 g eines Polyetherdiols der OH-Zahl 28, hergestellt durch Propoxylierung von Propylenglykol und anschließende Ethoxylierung des Propoxylierungsproduktes (PO/EO-Verhältnis = 80:20) werden mit 155,4 g lsophorondiisocyanat bei 70°C unter Zusatz von 0,02 g Dibutylzinndilaurat bis zum Erreichen des theoretischen NCO-Gehaltes von 0,78 % prepolymerisiert. Nach Abkühlen auf 60°C tropft man 140,4 g N-(3-Trimethoxysilylpropyl)asparaginsäure-diethylester (hergestellt gemäß EP-A 596 360, Bsp. 5) zügig zu und rührt, bis im IR-Spektrum keine Isocyanatbande mehr zu sehen ist. Das erhaltene Alkoxysilyl-Endgruppen aufweisende Polyurethanprepolymer hat eine Viskosität von 76000 mPas (23°C).

Herstellung eines Alkoxysilyl-Endgruppen aufweisenden Polyurethans A2)

2000 g eines Polyetherdiols der OH-Zahl 28, hergestellt durch Propoxylierung von Propylenglykol und anschließende Ethoxylierung des Propoxylierungsproduktes (PO/EO-Verhältnis = 80:20) werden mit 155,4 g Isophorondiisocyanat bei 70°C unter Zusatz von 0,02 g Dibutylzinndilaurat bis zum Erreichen des theoretischen NCO-Gehaltes von 0,78 % prepolymerisiert. Nach Abkühlen auf 60°C tropft man 102 g N-Phenyl-3-aminopropyltrimethoxysilan zügig zu und rührt, bis im IR-Spektrum keine Isocyanatbande mehr zu sehen ist. Das erhaltene Alkoxysilyl-Endgruppen aufweisende Polyurethanprepolymer hat eine Viskosität von 86000 mPas (23°C).

20

WO 01/00700 PCT/EP00/05392

- 12 -

Beispiel 1

20

25

30

Herstellung einer erfindungsgemäßen Polyurethanmasse

In einem handelsüblichen Planetenmischer werden die folgenden Komponenten zu einem gebrauchsfertigen Dichtstoff verarbeitet:

| | 36,4 Gew-Teile | Polyurethan A1) | | | | |
|----|----------------|---|--|--|--|--|
| | 12,9 GewTeile | Diisoundecylphtalat (Weichmacher) | | | | |
| 10 | 0,02 GewTeile | Dibutylzinn-bis-acetoacetonat (10%ig gelöst in Solvent- | | | | |
| | | naphta 100) | | | | |
| | 1,50 GewTeile | Vinyltrimethoxysilan | | | | |
| | 46,2 GewTeile | Fällungskreide (Typ: Socal® U1S2) | | | | |
| | 2,00 GewTeile | Maleinsäurediethylester | | | | |
| 15 | 1,40 GewTeile | Disparlon® NVG8403 S (Thixotropiermittel der Kusumoto | | | | |
| | | Chem. Ltd.) | | | | |

Die Mischung wird 10 Minuten bei einem Druck von 100 mbar dispergiert, wobei die Innentemperatur auf 60°C ansteigt. Anschließend werden

1,5 Gew.-Teile N-Aminoethyl-3-aminopropyl-trimethoxysilan

zugegeben und bei einem Druck von 100 mbar durch 10 minütiges Rühren eingearbeitet. Der so hergestellte Dichtstoff zeigt eine ausgezeichnete Standfestigkeit, haftet auf nahezu allen Untergründen und härtet mit einer Hautbildungszeit von 30 Minuten aus.

Das Produkt wir in eine handelsübliche Kartusche abgefüllt und bei 50°C gelagert. Nach einer Lagerdauer von 90 Tagen läßt sich das Produkt noch problemlos verarbeiten und zeigt unveränderte Produkteigenschaften.

Die folgenden mechanischen Eigenschaften wurden bestimmt:

Zugfestigkeit:

2,6 N/mm²

(DIN 53504)

Reißdehnung:

268 %

(DIN 53504)

5 Weiterreißwiderstand:

5,4 N/mm

(DIN 53515)

Shore A-Härte:

42

Beispiel 2

10 Herstellung einer erfindungsgemäßen Polyurethanmasse

In einem handelsüblichen Planetenmischer werden die folgenden Komponenten zu einem gebrauchsfertigen Dichtstoff verarbeitet:

15 36,0 Gew-Teile

Polyurethan aus Beispiel 2

12,6 Gew.-Teile

Diisoundecylphtalat (Weichmacher)

0,02 Gew.-Teile

Dibutylzinn-bis-acetoacetonat (10%ig gelöst in Solventnaphta

100)

2,20 Gew.-Teile

Vinyltrimethoxysilan

20 45,68 Gew.-Teile

25

30

Fällungskreide (Typ: Socal® U1S2 der Fa. Solvay GmbH)

2,0 Gew.- Teile

Maleinsäuredimethylester

1,4 Gew.-Teile

Cabosil® TS 720 (pyrogene Kieselsäure der Fa. Cabot GmbH)

Die Mischung wird 10 Minuten bei einem Druck von 100 mbar dispergiert, wobei die Innentemperatur auf 60°C ansteigt. Anschließend werden

2,1 Gew.-Teile N-Aminoethyl-3-aminopropyl-trimethoxysilan

zugegeben und bei einem Druck von 100 mbar durch 10 minütiges Rühren eingearbeitet.

- 14 -

Der so hergestellte Dichtstoff zeigt eine ausgezeichnete Standfestigkeit, haftet auf nahezu allen Untergründen und härtet mit einer Hautbildungszeit von 40 Minuten aus.

Das Produkt wir in eine handelsübliche Kartusche abgefüllt und bei 50 °C gelagert. Nach einer Lagerdauer von 90 Tagen läßt sich das Produkt noch problemlos verarbeiten und zeigt unveränderte Produkteigenschaften.

Die folgenden mechanischen Eigenschaften wurden bestimmt:

10 Zugfestigkeit:

2,8 N/mm²

(DIN 53504)

Reißdehnung:

290 %

(DIN 53504)

Weiterreißwiderstand:

7,5 N/mm

(DIN 53515)

Shore A-Härte:

46

15 **Beispiel 3**

Nicht erfindungsgemäßes Vergleichsbeispiel

Beispiel 1 wird wiederholt, mit der Änderung daß kein Maleinsäurediethylester zugesetzt wird. Das Produkt wir in eine handelsübliche Kartusche abgefüllt und bei 50°C gelagert. Nach einer Lagerdauer von 60 Tagen läßt sich das Produkt nicht mehr aus der Kartusche auspressen und ist geliert.

Die folgenden mechanischen Eigenschaften wurden bestimmt:

25 Zugfestigkeit:

2,5 N/mm²

(DIN 53504)

Reißdehnung:

235 %

(DIN 53504)

Weiterreißwiderstand:

5,6 N/mm

(DIN 53515)

Shore A-Härte:

Beispiel 4

Nicht erfindungsgemäßes Vergleichsbeispiel

- Beispiel 2 wird wiederholt, mit der Änderung, daß kein Maleinsäuredimethylester zugesetzt wird. Das Produkt wir in eine handelsübliche Kartusche abgefüllt und bei 50°C gelagert. Nach einer Lagerdauer von 35 Tagen läßt sich das Produkt nicht mehr aus der Kartusche auspressen und ist geliert.
- Die folgenden mechanischen Eigenschaften wurden bestimmt:

Zugfestigkeit:

2,8 N/mm²

(DIN 53504)

Reißdehnung:

250 %

(DIN 53504)

Weiterreißwiderstand:

7,4 N/mm

(DIN 53515)

Shore A-Härte:

46

15

Beispiel 5

Herstellung einer erfindungsgemäßen Polyurethanmasse

In einem handelsüblichen Planetenmischer werden die folgenden Komponenten zu einem gebrauchsfertigen Dichtstoff verarbeitet:

36,4 Gew-Teile

Polyurethan A1)

12,9 Gew.-Teile

Diisoundecylphtalat (Weichmacher)

0,04 Gew.-Teile

Dibutylzinn-bis-acetoacetonat (10%ig gelöst in Solventnaphta

25

100)

1,50 Gew.-Teile

Vinyltrimethoxysilan

46,2 Gew.-Teile

Fällungskreide (Typ: Socal U1S2)

1,40 Gew.-Teile

Disparlon NVG8403 S (Thixotropiermittel der Kusumoto

Chem. Ltd.)

WO 01/00700 PCT/EP00/05392

Die Mischung wird 10 Minuten bei einem Druck von 100 mbar dispergiert, wobei die Innentemperatur auf 60°C ansteigt. Anschließend werden

- 16 -

2,5 Gew.-Teile

5

15

N-(3-Trimethoxysilylpropyl)asparaginsäure-diethylester

(hergestellt gemäß EP-A 596 360, Bsp. 5)

zugegeben und bei einem Druck von 100 mbar durch 10 minütiges Rühren eingearbeitet.

Der so hergestellte Dichtstoff zeigt eine ausgezeichnete Standfestigkeit, haftet auf nahezu allen Untergründen und härtet mit einer Hautbildungszeit von 50 Minuten aus.

Das Produkt wir in eine handelsübliche Kartusche abgefüllt und bei 50°C gelagert. Nach einer Lagerdauer von 90 Tagen läßt sich das Produkt noch problemlos verarbeiten und zeigt unveränderte Produkteigenschaften.

Die folgenden mechanischen Eigenschaften wurden bestimmt:

Zugfestigkeit:

2,5 N/mm²

(DIN 53504)

20 Reißdehnung:

310 %

(DIN 53504)

Weiterreißwiderstand:

6,1 N/mm

(DIN 53515)

Shore A-Härte:

Patentansprüche

- 1. Über eine Silanpolykondensation vernetzende Polyurethanmassen, enthaltend
- 5 A) mindestens ein alkoxysilanfunktionelles Polyurethan mit Endgruppen der allgemeinen Formel (I)

$$R^{1}$$
 N $(CH_{2})_{n}$ Si Y $(I),$

in welcher

- R¹ für einen organischen Rest mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen,
- n für eine ganze Zahl von 2 bis 4 steht

und

15

- X,Y,Z gleiche oder verschiedene organische Reste darstellen, mit der Maßgabe, daß mindestens einer der Reste eine Alkoxygruppe mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen, vorzugsweise eine Methoxyoder Ethoxygruppe darstellt,
- B) mindestens einen basischen Füllstoff,
- 25 C) mindestens ein Umsetzungsprodukt aus mindestens einem Aminosilan der allgemeinen Formel (II)

$$R^2$$
 $(CH_2)_n$
 S_i
 Y
 (II)

in welcher

5 R² für ein Wasserstoffatom, oder eine Aminoethylgruppe steht und

n, X,Y, Z die bei Formel (I)genannte Bedeutung haben,

mit mindestens einem Malein- oder Fumarsäure(ester) der allgemeinen Formel (III)

$$R_3OOC-CH=CH-COOR_3$$
 (III),

in welcher

20

R₃ für eine Alkylgruppe mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen steht,

- E) mindestens eine metallorganische Verbindung und
- F) ggf. weitere Hilfsstoffe.
- Über eine Silanpolykondensation vernetzende Polyurethanmassen gemäß
 Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß als Komponente A) mindestens ein
 Alkoxysilyl-funktionelles Polyurethan der allgemeinen Formel (I)

$$R^{1}$$
 N $(CH_2)_r$ Si Y $(I),$

eingesetzt wird, worin X, Y, und Z jeweils für eine Methoxygruppe steht.

5 3. Über eine Silanpolykondensation vernetzende Polyurethanmassen gemäß Anspruch 1 und 2, dadurch gekennzeichnet, daß als Komponente A) mindestens ein Alkoxysilyl-funktionelles Polyurethan der allgemeinen Formel (I)

$$R^{1}$$
 $(CH_{2})_{n}$
 X
 \downarrow
 X
 \downarrow

eingesetzt wird, worin R₁ für einen Rest der allgemeinen Formel (IIb)

10

$$COOR_4$$
 $HC--CH_2$ (IIb),

- steht, wobei R₄ eine Alkylgruppe mit 1 bis 4 Kohlenstoffatomen bedeutet.
 - 4. Über eine Silanpolykondensation vernetzende Polyurethanmassen gemäß Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß als Komponente D) Aminosilanverbindungen der allgemeinen Formel (V) eingesetzt werden,

COOR₃

$$HN \longrightarrow O \qquad \qquad \downarrow$$

$$N \longrightarrow (CH_2)_n \longrightarrow Si \longrightarrow X \qquad (V),$$

in welcher

- für einen linearen oder verzweigten aliphatischen Kohlenwasserstoffrest mit maximal 12 Kohlenstoffatomen steht, n = 3 ist und X,Y, Z für Methoxy oder Ethoxyreste stehen.
- 5. Verfahren zur Herstellung von kondensationsvernetzenden Polyurethanmassen gemäß Anspruch 1, wonach die Komponenten A), B), C), E) sowie ggf. F) unter Ausschluß von Feuchtigkeit vermischt werden und anschließend mit der Komponente D) versetzt werden.
- Verwendung von kondensationsvernetzenden Polyurethanmassen gemäß Anspruch 1 als Dichtstoff, Kleb- oder Beschichtungsmaterial.

(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum Internationales Büro



(43) Internationales Veröffentlichungsdatum
4. Januar 2001 (04.01.2001)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer WO 01/00700 A3

(51) Internationale Patentklassifikation*: C08G 18/10. 18/28

D-51375 Leverkusen (DE). **WILMES, Oswald** [DE/DE]; Emund-ter-Meer-Strasse 28, D-51061 Köln (DE).

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP00/05392

(74) Gemeinsamer Vertreter: BAYER AKTIENGE-SELLSCHAFT; D-51368 Leverkusen (DE).

(22) Internationales Anmeldedatum:

13. Juni 2000 (13.06.2000)

(25) Einreichungssprache:

Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache:

Deutsch

(30) Angaben zur Priorität:

199 29 011.3 25. Juni 1999 (25.06.1999) DE 199 29 029.6 25. Juni 1999 (25.06.1999) DE

- (71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von US): BAYER AKTIENGESELLSCHAFT [DE/DE]; D-51368 Leverkusen (DE).
- (71) Anmelder (nur für US): WALTER, Marie-Hélène, Marie-Ange, Christiane, geb. Dubourg (Erbin des verstorbenen Erfinders) [FR/DE]; Zum Galkhausener Bach 17, D-40764 Langenfeld (DE).
- (72) Erfinder: WALTER, Ulrich (verstorben).
- (72) Erfinder; und
- (75) Erfinder/Anmelder (nur für US): SCHMALSTIEG, Lutz [DE/DE]; Schnurgasse 45, D-50676 Köln (DE). LEMMERZ, Ralf [DE/DE]; Am Scherfenbrand 85,

- (81) Bestimmungsstaaten (national): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BY, CA, CH, CN, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZW.
- (84) Bestimmungsstaaten (regional): ARIPO-Patent (GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZW), eurasisches Patent (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), OAPI-Patent (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

Veröffentlicht:

- mit internationalem Recherchenbericht
- (88) Veröffentlichungsdatum des internationalen Recherchenberichts: 2. August 2001

Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes, und der anderen Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe der PCT-Gazette verwiesen.

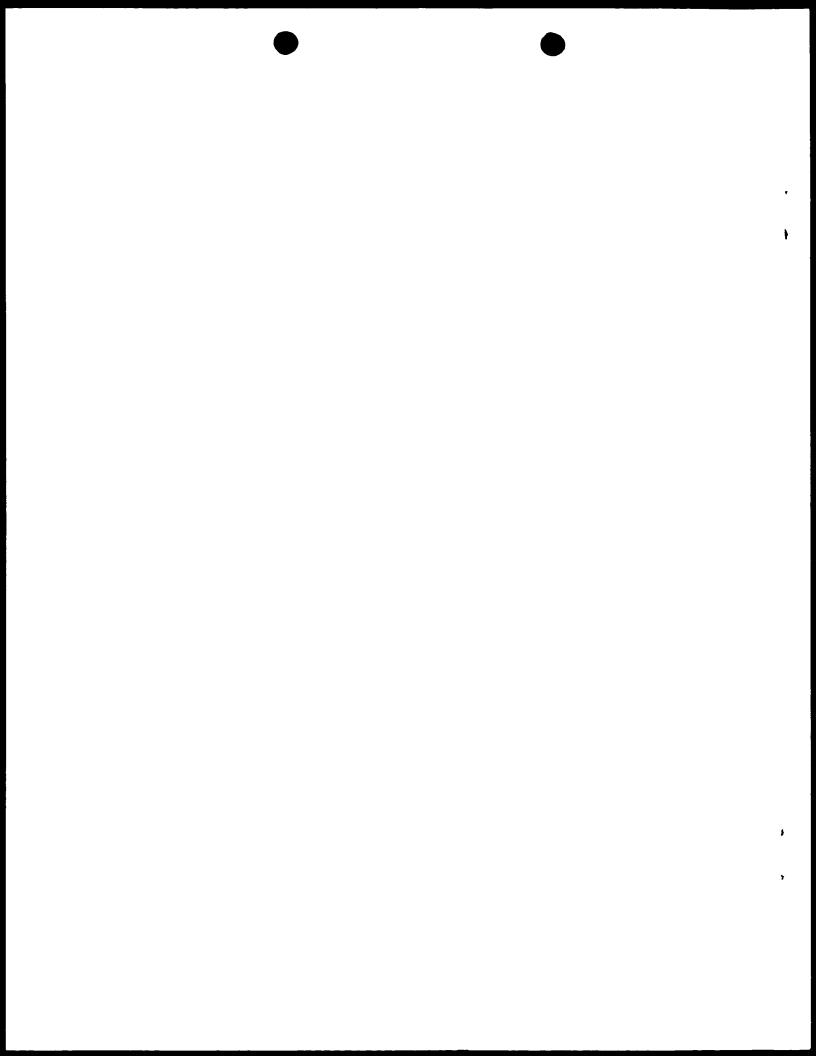
(54) Title: CONDENSATION CROSS-LINKING POLYURETHANE MATERIALS CONTAINING SPECIAL AMINOSILANES, A METHOD FOR THE PRODUCTION THEREOF AND THEIR USE

(54) Bezeichnung: SPEZIELLE AMINOSILANE ENTHALTENDE. KONDENSATIONSVERNETZENDE POLYURETHAN-MASSEN, EIN VERFAHREN ZU IHRER HERSTELLUNG SOWIE IHRE VERWENDUNG

(57) Abstract: The invention relates to silane polycondensation cross-linking polyurethane materials containing at least one alkoxysilane functional polyurethane, at least one basic filler, at least one conversion product of an amino silane with a maleic acid ester or a fumaric acid ester, at least one organometallic compound, and optionally containing additional auxiliary agents. The invention also relates to a method for producing said polyurethane materials and to the use thereof.

(57) Zusammenfassung: Die Erfindung betrifft über eine Silanpolykondensation vernetzende Polyurethanmassen, enthaltend mindestens ein alkoxysilanfunktionelles Polyurethan, mindestens einen basischen Füllstoff, mindestens ein Umsetzungsprodukt eines Aminosilans mit einem Malein- oder Fumarsäureester, mindestens eine metallorganische Verbindung und ggf. weitere Hilfsstoffe, ein Verfahren zu deren Herstellung sowie deren Verwendung.





| A. CLASSIFIC | CATION OF SUBJECT | MATTER |
|--------------|-------------------|-----------|
| IPC 7 | C08G18/10 | C08G18/28 |

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system totlowed by classification symbols) IPC 7-C08G

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

| Category ° | Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages | Relevant to claim No. |
|------------|---|-----------------------|
| A | EP 0 831 108 A (OSI SPECIALTIES) 25 March 1998 (1998-03-25) cited in the application page 2, line 38 -page 4, line 21 page 4, line 47 - line 51; claims; examples | 1-3,5,6 |
| A | EP 0 596 360 A (BAYER) 11 May 1994 (1994-05-11) cited in the application page 2, line 35 -page 4, line 7; claims; examples | 1-3,5,6 |
| A | EP 0 864 575 A (BAYER) 16 September 1998 (1998-09-16) page 3, line 41 -page 6, line 1/ | 1-6 |

| Further documents are listed in the continuation of box C. | Patent family members are listed in annex. |
|---|---|
| "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier document but published on or after the international filling date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cried to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filling date but later than the priority date claimed | "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention. "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone. "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art. "&" document member of the same patent family |
| Date of the actual completion of the international search 15 February 2001 | Date of mailing of the international search report 23/02/2001 |
| Name and mailing address of the ISA European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswrijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016 | Authonzed officer Bourgonje, A |

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Intermediate Application No
PCT/EP 00/05392

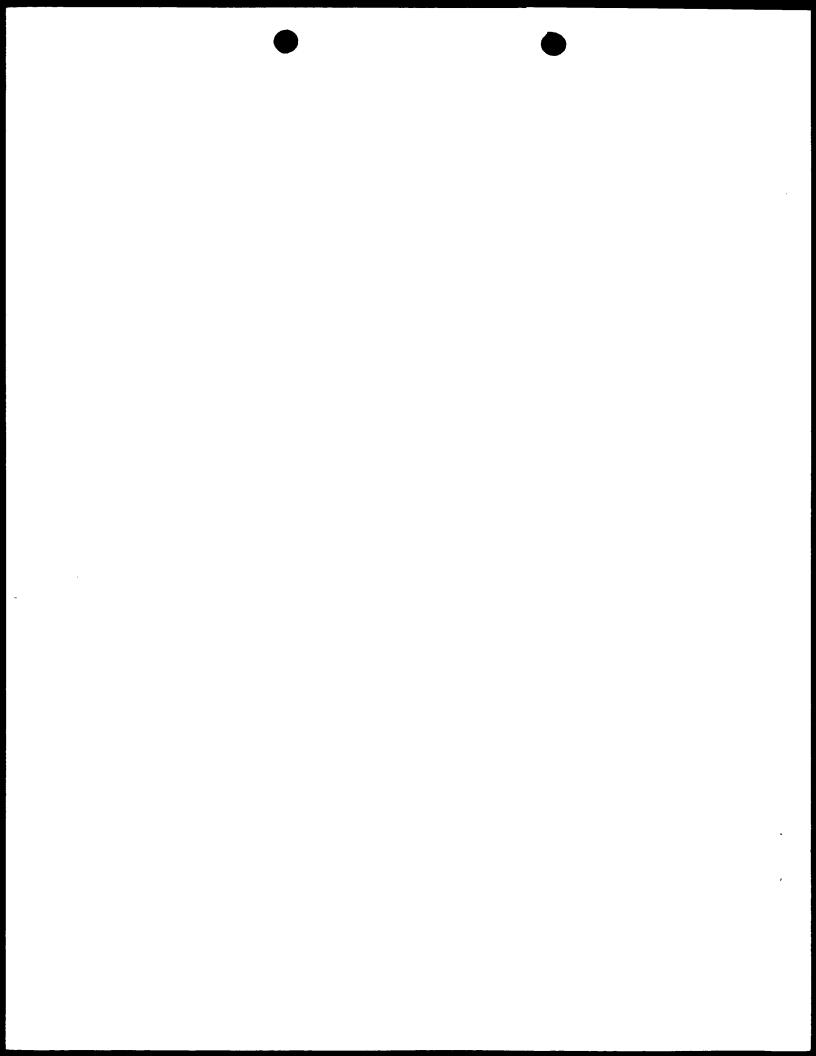
| 0.40 | 2001 W 5 170 00 10 10 10 10 10 10 10 10 10 10 10 10 | PC1/EP 00/05392 |
|------------|--|-----------------------|
| Category ° | Occuments Considered to be relevant Citation of document, with indication where appropriate, of the relevant passages | Relevant to claim No. |
| | oration of deconion, minimum of appropriate or monoral passages | Trocyani to claim No. |
| Α | EP 0 807 649 A (BAYER) 19 November 1997 (1997-11-19) page 2, line 19 -page 4, line 39; examples | 1,4 |
| A | EP 0 994 138 A (BAYER) 19 April 2000 (2000-04-19) page 3, line 24 -page 4, line 42 page 7, line 1 - line 10 | 1-6 |
| | | |
| | | |
| | | |
| | | |
| | | |
| | | |
| | | |
| | | |

INTER TIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

Jonal Application No PCT/EP 00/05392

| Patent document cited in search repo | | Publication date | i | Patent family member(s) | Publication date |
|--------------------------------------|---|------------------|--|--|--|
| EP 831108 | A | 25-03-1998 | BR JP US | 9704796 A 10204144 A 6001946 A | 22-12-1998 04-08-1998 14-12-1999 |
| EP 596360 | A | 11-05-1994 | DE AT CA DE ES JP US | 4237468 A 175970 T 2102272 A 59309327 D 2127777 T 6211879 A 5364955 A | 11-05-1994 15-02-1999 07-05-1994 04-03-1999 01-05-1999 02-08-1994 15-11-1994 |
| EP 864575 | Α | 16-09-1998 | US JP | 5908948 A 10251272 A | 01-06-1999 22-09-1998 |
| EP 807649 | A | 19-11-1997 | DE BR CA CN CZ HU JP PL US | 19619538 A 9703158 A 2205106 A 1170009 A 9701478 A 9700897 A 10053637 A 319935 A 5756751 A | 20-11-1997 15-09-1998 15-11-1997 14-01-1998 17-12-1997 28-05-1999 24-02-1998 24-11-1997 26-05-1998 |
| EP 994138 | Α | 19-04-2000 | US JP 2 | 6077902 A 2000119366 A | 20-06-2000 25-04-2000 |



INTERNATIONALE RECHERCHENBERICHT

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES IPK 7 C08G18/10 C08G18/28

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprufstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole) IPK-7 - C08G

Recherchierte aber nicht zum Mindestprufstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Wahrend der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

| Kategone® | Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile | Betr. Anspruch Nr. |
|-----------|--|--------------------|
| A | EP 0 831 108 A (OSI SPECIALTIES) 25. Mārz 1998 (1998-03-25) in der Anmeldung erwähnt Seite 2, Zeile 38 -Seite 4, Zeile 21 Seite 4, Zeile 47 - Zeile 51; Ansprüche; Beispiele | 1-3,5,6 |
| Α | EP 0 596 360 A (BAYER) 11. Mai 1994 (1994-05-11) in der Anmeldung erwähnt Seite 2, Zeile 35 -Seite 4, Zeile 7; Ansprüche; Beispiele | 1-3,5,6 |
| А | EP 0 864 575 A (BAYER) 16. September 1998 (1998-09-16) Seite 3, Zeile 41 -Seite 6, Zeile 1/ | 1-6 |

| Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen | X Siehe Anhang Patentlamilie |
|--|--|
| Besondere Kategonen von angegebenen Veröffentlichungen "A" Veröffentlichung, die den aligemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist "E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist "L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt) "O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht "P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beansprüchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist | kann nicht als auf erfinderischer Tatigkeit berühend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategone in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann nahellegend ist *&* Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist |
| Datum des Abschlusses der internationalen Recherche 15. Februar 2001 | Absendedatum des internationalen Recherchenberichts 23/02/2001 |
| Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL – 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016 | Bevoltmachtigter Bediensteter Bourgonje, A |

INTERNATIONALER CHERCHENBERICHT

| Into | ies Aktenzeichen |
|--------|------------------|
| PCT/EP | 00/05392 |

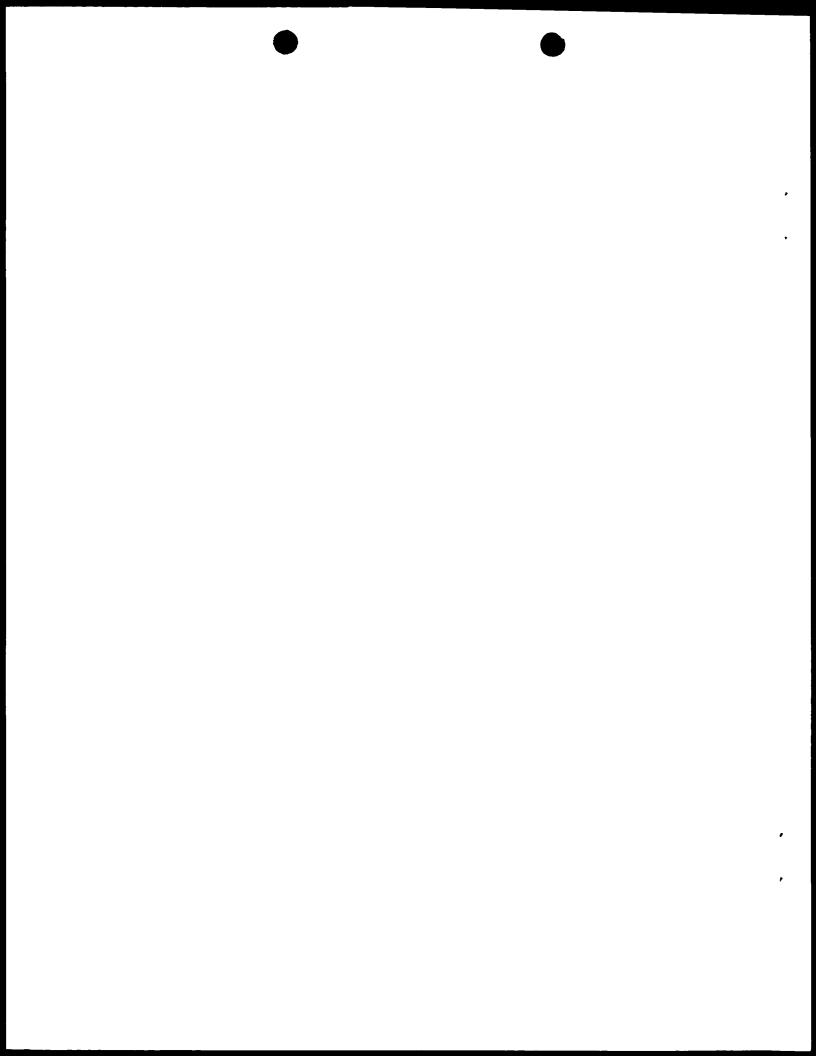
| C.(Fortsetzi | | | |
|--------------|---|--------------------|--|
| | ing) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN | | |
| Kategone | Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile | Betr. Anspruch Nr. | |
| A | EP 0 807 649 A (BAYER) 19. November 1997 (1997-11-19) Seite 2, Zeile 19 -Seite 4, Zeile 39; Beispiele | 1,4 | |
| A | Seite 2, Zeile 19 -Seite 4, Zeile 39; Beispiele EP 0 994 138 A (BAYER) 19. April 2000 (2000-04-19) Seite 3, Zeile 24 -Seite 4, Zeile 42 Seite 7, Zeile 1 - Zeile 10 | 1-6 | |

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungert, die zur selben Patentfamilie gehören

onales Aktenzeichen
PCT/EP 00/05392

| | echerchenberio tes Patentdoki | | Datum der Veröffentlichung | | Aitglied(er) der Patentfamilie | Datum der Veröffentlichung |
|----|----------------------------------|-------|-------------------------------|----------|-----------------------------------|-------------------------------|
| EP | 831108 | Α | 25-03-1998 | BR | 9704796 A | 22-12-1998 |
| | | | | JP | 10204144 A | 04-08-1998 |
| | | | | US | 6001946 A | 14-12-1999 |
| EP | 596360 | A | 11-05-1994 | DE | 4237468 A | 11-05-1994 |
| | | | | AT | 175970 T | 15-02-1999 |
| | | | | CA | 2102272 A | 07-05-1994 |
| | | | | DE | 59309327 D | 04-03-1999 |
| | | | | ES | 2127777 T | 01-05-1999 |
| | | | | JP | 6211879 A | 02-08-1994 |
| | | | | US | 5364955 A | 15-11-1994 |
| EP | 864575 | A | 16-09-1998 | US | 5908948 A | 01-06-1999 |
| | | | | JP | 10251272 A | 22-09-1998 |
| EP | 807649 | A | 19-11-1997 | DE | 19619538 A | 20-11-1997 |
| | | | | BR | 9703158 A | 15-09-1998 |
| | | | | CA | 2205106 A | 15-11-1997 |
| | | | | CN | 1170009 A | 14-01-1998 |
| | | | | CZ | 9701478 A | 17-12-1997 |
| | | | | HU | 9700897 A | 28-05-1999 |
| | | | | JP | 10053637 A | 24-02-1998 |
| | | | | PL | 319935 A | 24-11-1997 |
| | | | | US | 5756751 A | 26-05-1998 |
| EP | 994138 | A | 19-04-2000 | US US | 6077902 A | 20-06-2000 |
| | | | | JP | 2000119366 A | 25-04-2000 |



PATENT COOPERATION TREATY

10/019578

PCT

NOTIFICATION OF ELECTION

(PCT Rule 61.2)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

Commissioner
US Department of Commerce
United States Patent and Trademark
Office, PCT
2011 South Clark Place Room
CP2/5C24
Arlington, VA 22202

in its capacity as elected Office

| Date of mailing (day/month/year) | П |
|----------------------------------|----|
| 12 February 2001 (12.02.01) | ľL |
| | |

International application No. PCT/EP00/05392

International filing date (day/month/year) 13 June 2000 (13.06.00)

Applicant's or agent's file reference Le A 33 590-WO PWE

ETATS-UNIS D'AMERIQUE

Priority date (day/month/year) 25 June 1999 (25.06.99)

Applicant

SCHMALSTIEG, Lutz et al

| 1. | The designated Office is hereby notified of its election made: |
|----|---|
| | X In the demand filed with the International Preliminary Examining Authority on: |
| | 18 December 2000 (18.12.00) |
| • | in a notice effecting later election filed with the International Bureau on: |
| 2. | The election X was was not |
| | made before the expiration of 19 months from the priority date or, where Rule 32 applies, within the time limit under Rule 32.2(b). |
| | |
| | RECEIVED |

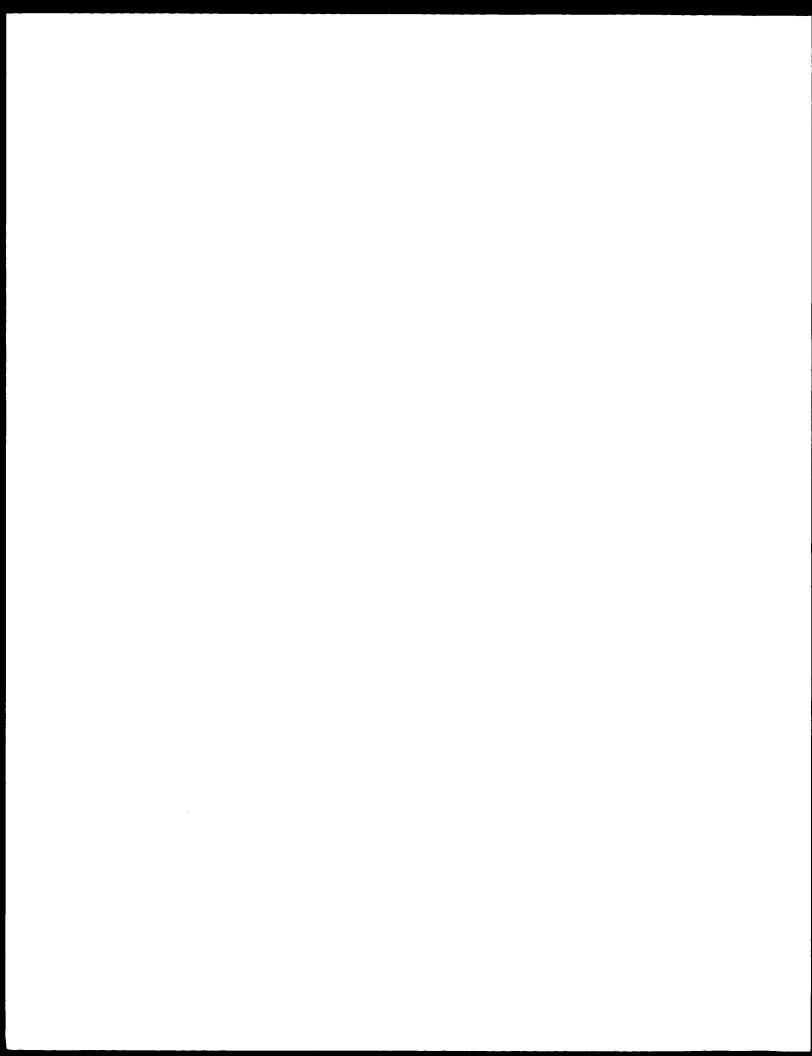


The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland Authorized officer

S. Mafla

Telephone No.: (41-22) 338.83.38

Facsimile No.: (41-22) 740.14.35



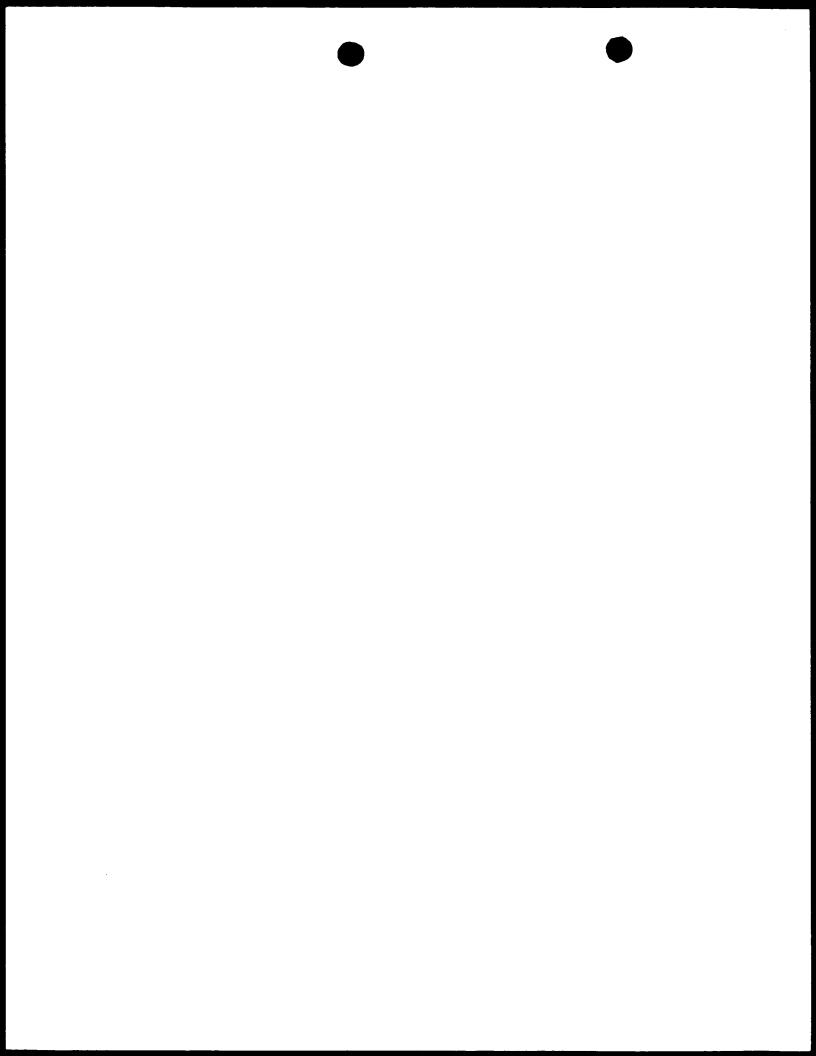


PCT

INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

(PCT Article 36 and Rule 70)

| Applicant's or agent's file reference Le A 33 590-WO PWE | FOR FURTHER ACTION | SeeNotificationofTransmittalofInternational Preliminary Examination Report (Form PCT IPEA 416) | | |
|--|----------------------------------|--|--|--|
| International application No. PCT EP00 05392 | International filing date (day r | · | Priority date (day month year) 25 June 1999 (25.06.99) | |
| International Patent Classification (IPC) or n C08G 18 10, 18 28 | ational classification and IPC | | | |
| Applicant BAYER AKTIENGESELLSCHAFT | | | | |
| 1. This international preliminary examination report has been prepared by this International Preliminary Examining Authority and is transmitted to the applicant according to Article 36. 2. This REPORT consists of a total of6 sheets, including this cover sheet. □ This report is also accompanied by ANNEXES, i.e., sheets of the description, claims and or drawings which have been amended and are the basis for this report and or sheets containing rectifications made before this Authority (see Rule 70.16 and Section 60° of the Administrative Instructions under the PCT). These annexes consist of a total of sheets. 3. This report contains indications relating to the following items: 1 | | | | |
| Date of submission of the demand | Date of | Date of completion of this report | | |
| 18 December 2000 (18.1 | 2.00) | 06 Aı | ugust 2001 (06.08.2001) | |
| Name and mailing address of the IPEA EP | Authori | Authorized officer | | |
| Facsimile No. | Telepho | Telephone No. | | |





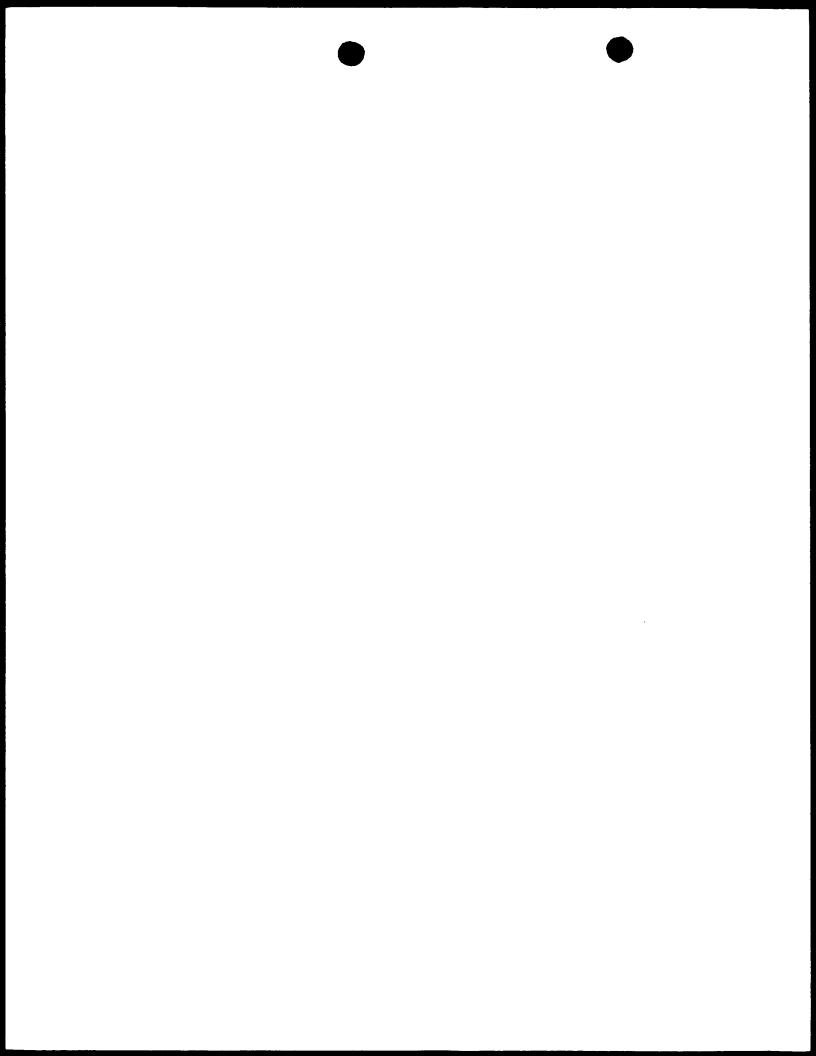


INTERNATIONAL PRELIMINARY EXAMINATION REPORT

International application No.

PCT EP00 05392

| 1. | Basis | is of the re | report | |
|------|-----------------------------|---|--|-------------------------|
| 1 | With | h regard t | to the elements of the international application:* | |
| | | the inte | ternational application as originally filed | |
| | \boxtimes | the des | escription: | |
| | - | pages | | , as originally filed |
| | | pages | | |
| | | pages | | |
| | | the clar | | |
| | | pages | | or oppoinable filed |
| | | pages | , as amended (together with any stat | toment under Article 19 |
| | | pages | | filed with the demand |
| | | pages | , filed with the letter of | |
| | | the dra | awings: | |
| | Щ. | pages | | o originally filed |
| | | pages | | |
| | | pages | | |
| | | | | |
| | Ш, | | ence listing part of the description: | |
| | | pages pages | | |
| | | pages pages | | , filed with the demand |
| | | | , filed with the letter of | |
| 2. | 1000 15 | internation se element the lang the lang the lang | to the language, all the elements marked above were available or furnished to this Authority in onal application was filed, unless otherwise indicated under this item. Into were available or furnished to this Authority in the following language inguage of a translation furnished for the purposes of international search (under Rule 23.1(b)). Inguage of publication of the international application (under Rule 48.3(b)). Inguage of the translation furnished for the purposes of international preliminary examination 3. | which is: |
| 3. | With | or 55.3) h-regard | to any nucleotide and/or amino acid sequence disclosed in the international applicate examination was carried out on the basis of the sequence listing: | |
| | | | ned in the international application in written form. | |
| | | | ogether with the international application in computer readable form. | |
| | | | ned subsequently to this Authority in written form. | |
| | | | ned subsequently to this Authority in computer readable form. | |
| | | The sta | tatement that the subsequently furnished written sequence listing does not go beyond attional application as filed has been furnished. | |
| | | The stat | atement that the information recorded in computer readable form is identical to the written urnished. | n sequence listing has |
| 4. | | | nendments have resulted in the cancellation of: | |
| | | | the description, pages | |
| | | 1 1 | the claims, Nos. | ı |
| | | t' | the drawings, sheets fig | |
| 5. | | This repo | port has been established as if (some of) the amendments had not been made, since they have the disclosure as filed, as indicated in the Supplemental Box (Rule 70.2(c)).** | been considered to go |
| | Replac in this and 70 | icement sh is report 70.17). | sheets which have been furnished to the receiving Office in response to an invitation under Arti t as "originally filed" and are not annexed to this report since they do not contain ame | endments (Rule 70.16 |
| ×¥ . | Any re | eplacemei | ent sheet containing such amendments must be referred to under item 1 and annexed to this repo | ort. |
| _ | | | | |



International application No POT - EP 00005392

NO

| Reasoned statement under Article 3 citations and explanations supporting | | , inventive step or industrial appli | cability; |
|--|--------|--------------------------------------|-----------|
| Statement | | | |
| Novelty (N) | Claims | 1 - 6 | YES |
| | Claims | | NO NO |
| Inventive step (IS) | Claims | 1 - 6 | YES |
| | Claims | | NO NO |
| Industrial applicability (IA) | Claims | 2 - 6 | YES |

2. Citations and explanations

Reference is made to the following document:

Claims

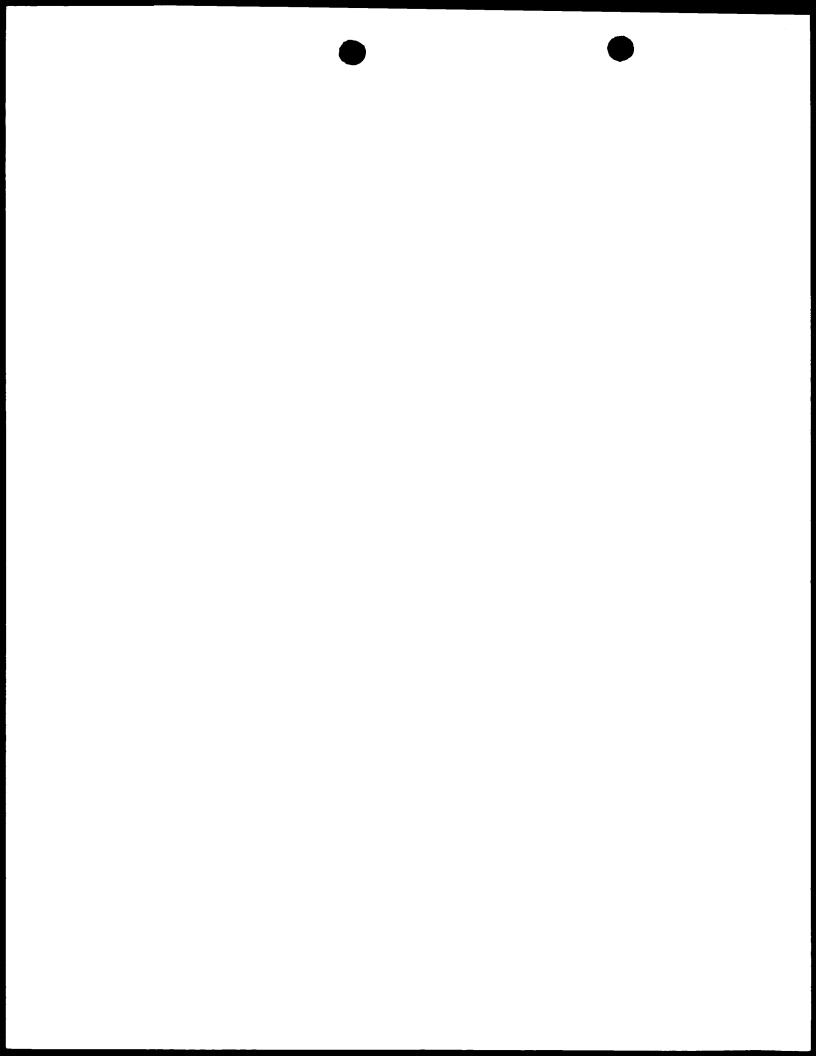
D1: EP-A-0 596 360 (BAYER) 11 May 1994 (1994-05-11), cited in the application

1. Novelty (PCT Article 33(2)):

The subject matter of the current Claims 1 to 6 is novel with respect to the prior art as cited in the international search report. None of the documents cited therein discloses polyurethane compounds prosslinking via silane polycondensation and containing: A) at least one alkoxysilane-functional polyurethane; B) at least one basic filler; C) at least one reaction product from at least one aminosilane and at least one maleic or fumaric acid ester; E) at least one organometallic compound; and F) optionally further auxiliary substances.

2. Inventive step (PCT Article 33(3)):

The subject matter of the current Claims 1 to 6 also involves an inventive step since, for the following reasons, D1, which can be considered the closest prior art, neither alone nor combined with another international



search report citation suggests the claimed compounds:

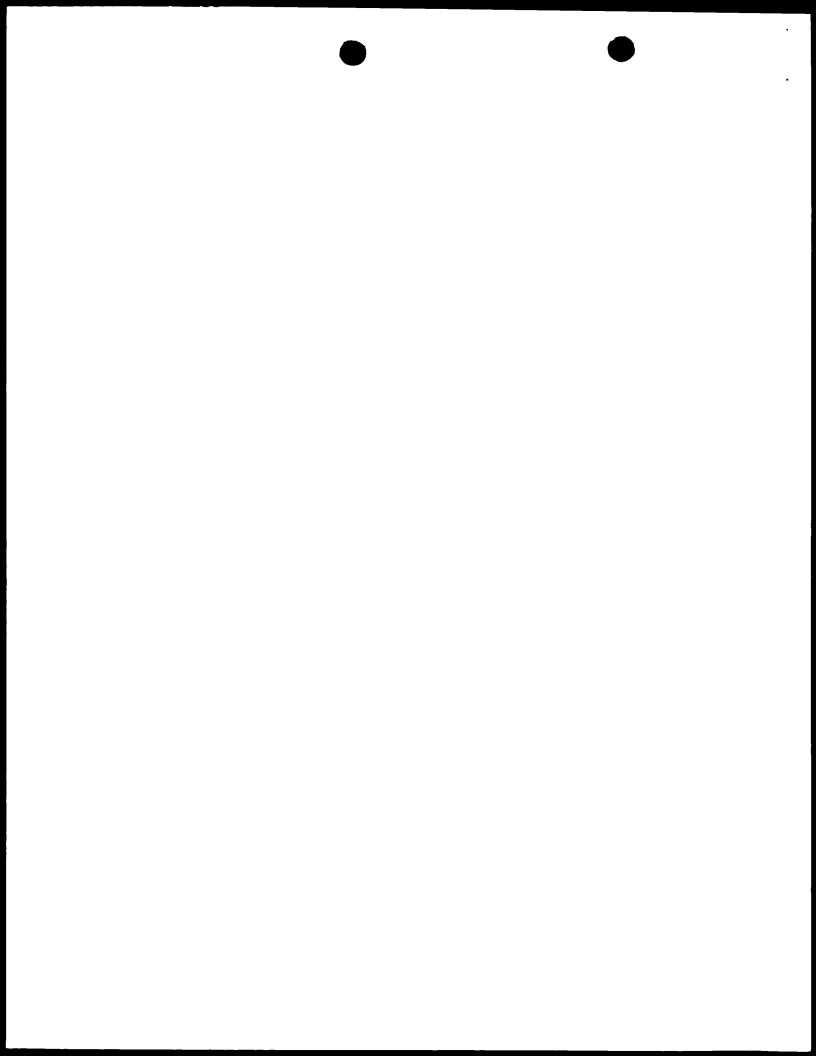
D1 discloses the production of polyurethane compounds crosslinking via silane polycondensation, polyurethane prepolymers being reacted with the reaction products mentioned in C: above.

The compounds claimed in the current claims differ from those in D1 in that the reaction products mentioned in C) are reacted with alkoxysilane-functional polyurethanes instead of polyurethane prepolymers which are not alkoxysilane-modified.

In comparison with the teaching of D1, the object of the present application was to prepare polyurethane compounds which crosslink via silane polycondensation and are intended to have improved stability during storage whilst otherwise having good mechanical properties and adhering well to the substrate.

Using some examples and comparative examples, the applicant has shown that the stated object can be achieved by the claimed compounds.

Since neither D1 nor any other document can suggest reacting the reaction products produced from aminosilane and maleic or fumaric acid esters directly with alkoxysilane-functional polyurethanes in order to attain polyurethane compounds which are stable during storage, crosslink via silane polycondensation and additionally have good mechanical properties and good adhesion, the subject matter of the application can be recognized as involving an inventive step.



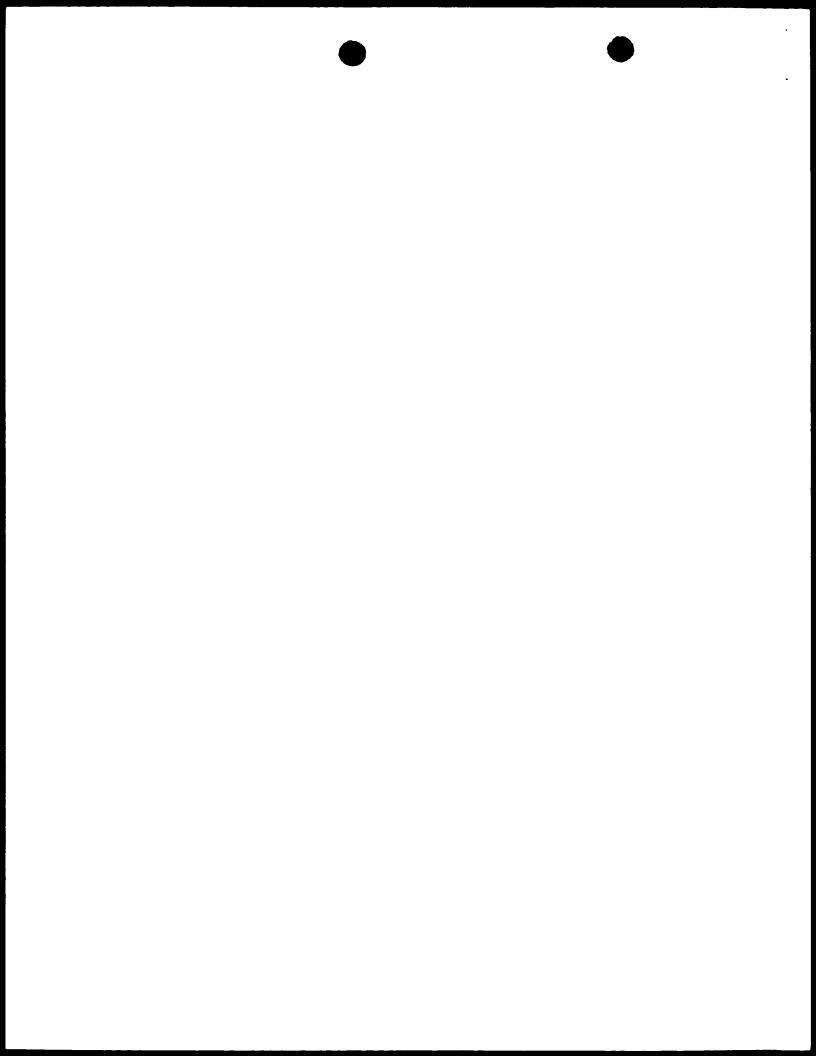
International application No.

PCT/EP 00/05392

VII. Certain defects in the international application

The following defects in the form or contents of the international application have been noted:

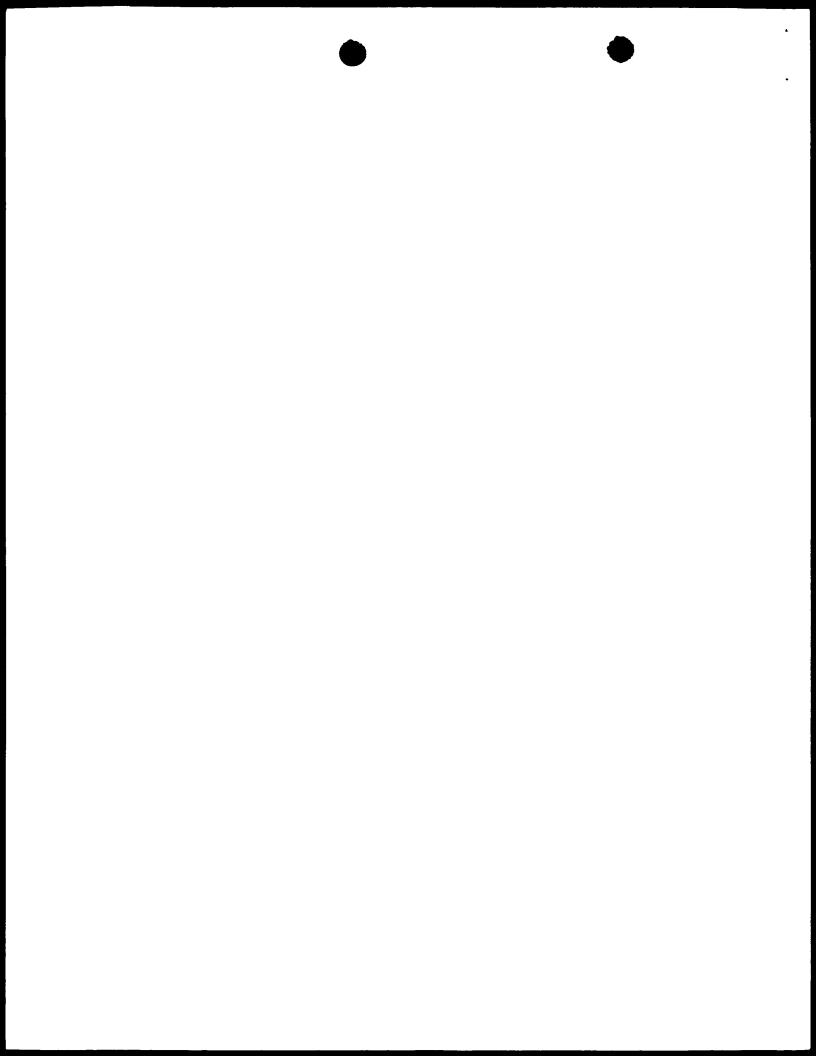
- a) All the examples should read [in the German] "Das Produkt wird in eine".
- b) In Example 2, the designation "polyurethane from Example 2" is unclear.
- o In Claim 1, the term "preferably" and the preferred embodiment following this term do not restrict the scope of the claim. This preferred embodiment could at best be made the subject of a further subclaim.



International application No. PCT/EP 00/05392

The following observations on the clarity of the claims, description, and drawings or on the question whether the claims are fully supported by the description, are made:

Component D, mentioned in Claims 4 and 5, does not appear in Claim 1 to which both claims refer back. This renders the two claims unclear (PCT Article 6).

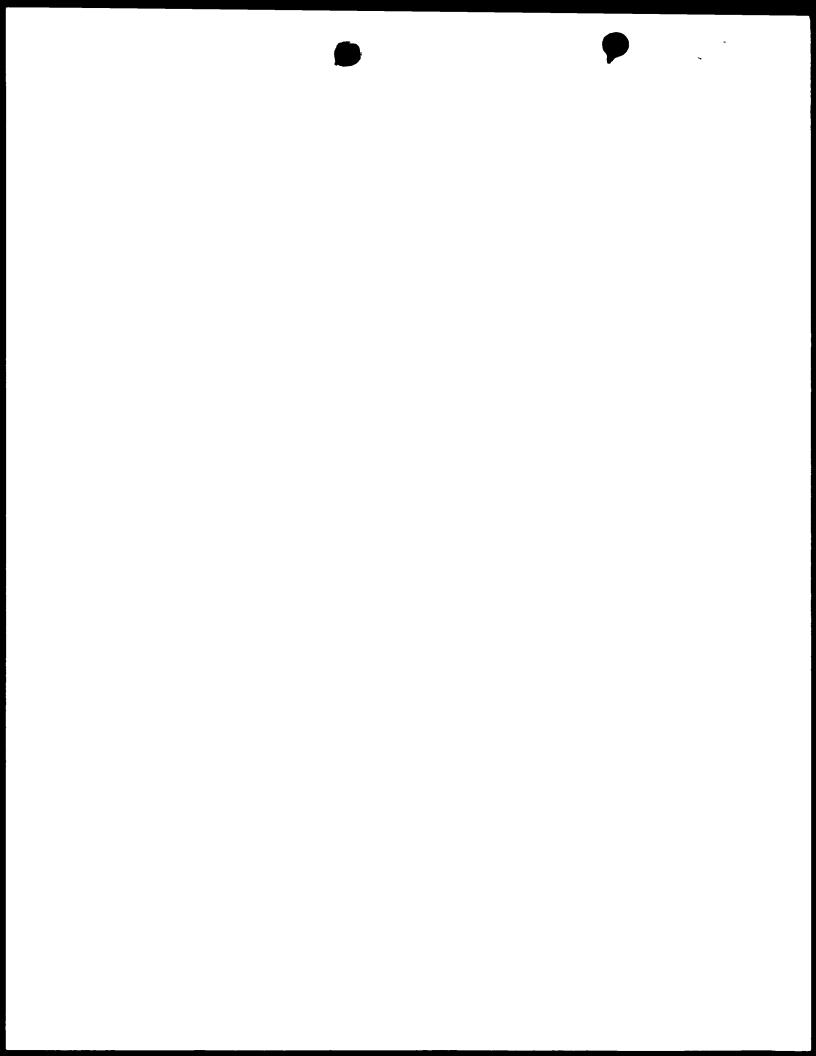


PCT

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

(Artikel 18 sowie Regeln 43 und 44 PCT)

| Aktenzeichen des Anmeiders oder Anwalts | WEITERES | siehe Mitteilung über | die Übermittlung des internationalen Formblatt PCT/ISA/220) sowie, sowe | ıt | | |
|--|--|------------------------------------|--|-------------|--|--|
| Le A 33 590-W0 PWE | VORGEHEN | zutreffend, nachstehe | | | | |
| Internationales Aktenzeichen | Internationales Anme | Idedatum | (Fruhestes) Prioritatsdatum (Tag N | lonat Jahri | | |
| PCT/EP 00/05392 | (Tag Monat Jahr) 13/06/2 | 2000 | | | | |
| Anmeider | <u> </u> | | | | | |
| | | | | | | |
| BAYER AKTIENGESELLSCHAFT | | | | | | |
| | | | | | | |
| Dieser internationale Recherchenbericht wurd Artikel 18 übermittelt. Eine Kopie wird dem In | de von der Internationale ternationalen Büro über | en Recherchenbehörde (mittelt. | erstellt und wird dem Anmelder gemä | ß | | |
| | 2 | | | | | |
| Dieser internationale Recherchenbericht umfa | aßt insgesamt <u> </u> | Blätter. | n Unterlagen zum Stand der Technik | bei | | |
| Daruber hinaus liegt ihm jev | velis eine Kopie der in c | llesem bench genamme | Tontenagen zum stand der Festimik | | | |
| Grundlage des Berichts | | | | | | |
| a Hinsichtlich der Sprache ist die inte | rnationale Recherche a | uf der Grundlage der inte | ernationalen Anmeldung in der Sprac | he | | |
| durchgeführt worden, in der sie eing | jereicht wurde, sofern u | inter diesem Punkt nichts | anderes angegeben ist. | | | |
| Die internationale Recherch Anmeldung (Regel 23.1 b)) | ne ist auf der Grundlage durchgeführt worden. | einer bei der Behörde e | ngereichten Übersetzung der interna | tionalen | | |
| b. Hinsichtlich der in der internationale | en Anmeldung offenbart | en Nucleotid- und/ode | Aminosäuresequenz ist die interna | ıtionale | | |
| Recherche auf der Grundlage des S in der internationalen Anme | | | | | | |
| zusammen mit der internation | | | ngereicht worden ist. | | | |
| <u> </u> | | | | | | |
| bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist. bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist. | | | | | | |
| · · · · · · · · · · · · · · · · · · · | hträglich eingereichte s | chriftliche Sequenzproto | koll nicht über den Offenbarungsgeha | alt der | | |
| | | | em schriftlichen Sequenzprotokoll ent | sprechen. | | |
| 2. Bestimmte Ansprüche ha | han sich als nicht rec | herchierhar erwiesen (s | ijehe Feld I). | | | |
| 2. Bestimmte Ansprüche ha 3. MangeInde Einheitlichkei | | | 10 | | | |
| 3. Mangemae Emmeration. | t don Etimoding foreste | | | | | |
| 4. Hinsichtlich der Bezeichnung der Erfü | nduna | | | | | |
| X wird der vom Anmelder ein | _ | ehmigt. | | | | |
| | wurde der Wortlaut von der Behörde wie folgt festgesetzt: | | | | | |
| | | | | | | |
| | | | | | | |
| | | | | | | |
| 5. Hinsichtlich der Zusammenfassung | | - lo : & | | | | |
| wird der vom Anmelder ein | | | ung von der Behörde festgesetzt. Der | | | |
| Anmelder kann der Behörd | Anmelder kann der Behörde innerhalb eines Monats nach dem Datum der Absendung dieses internationalen Recherchenberichts eine Stellungnahme vorlegen. | | | | | |
| The state of the s | | | | | | |
| 6. Folgende Abbildung der Zeichnungen wie vom Anmelder vorgesc | | 2004 I G 20 TOTO HOTEL | X keine der Abb. | | | |
| weil der Anmelder selbst ke | - | hlagen hat. | | | | |
| well diese Abbildung die El | | | | | | |
| Well diese / bblidding die Erimading beese Neimzeleinen. | | | | | | |





Internationales Aktenzeichen

PCT/EP 00/05392

| | CULTIFICIANC DES ANM | ELDUNGSGEGENSTANDES |
|----------|----------------------|---|
| A. KLAS | SIFIZIERUNG DEG ANNI | 200000000000000000000000000000000000000 |
| TDV 7 | C08G18/10 | C08G18/28 |
| IPK 7 | | 000010/20 |
| T1 1/2 / | 000010/10 | - |

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprufstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)

IPK 7 C08G

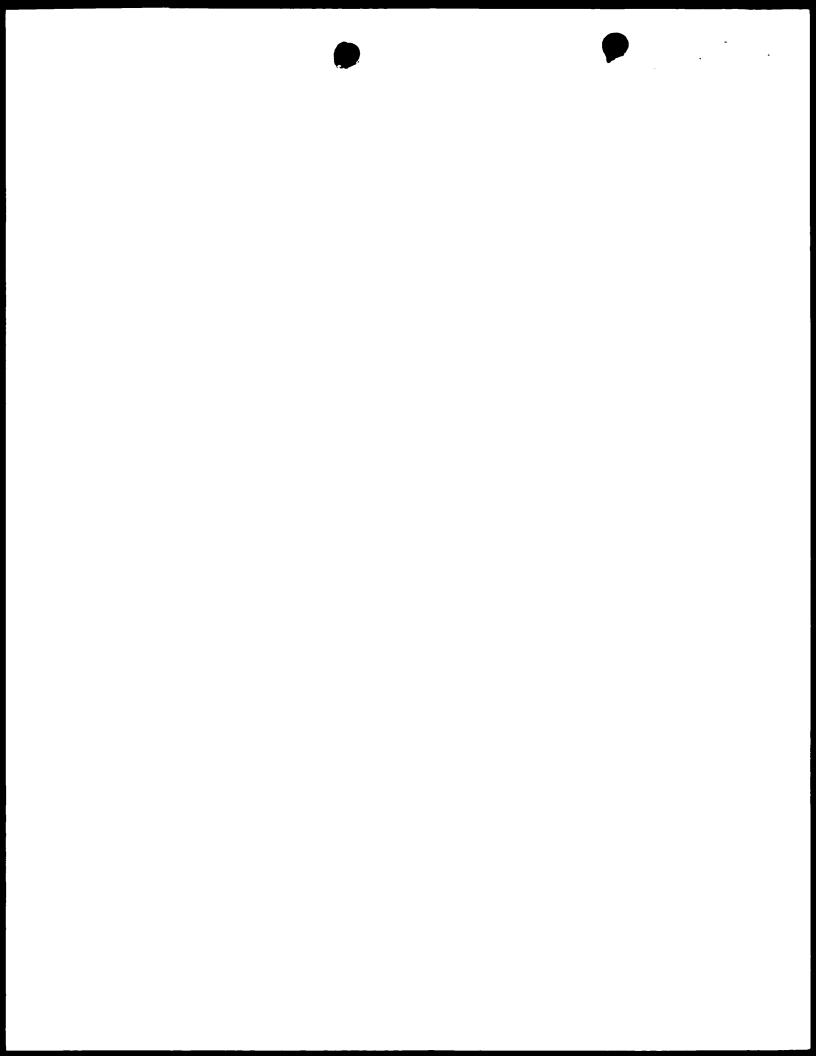
Recherchierte aber nicht zum Mindestprufstöff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Wahrend der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank) und evtl. verwendete Suchbegriffe)

| ategone | Bezeichnung der Veroffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile | Betr Anspruch Nr |
|---------|--|------------------|
| • • , | EP 0 831 108 A (OSI SPECIALTIES) 25. März 1998 (1998-03-25) in der Anmeldung erwähnt Seite 2, Zeile 38 -Seite 4, Zeile 21 Seite 4, Zeile 47 - Zeile 51; Ansprüche; Beispiele | 1-3,5,6 |
| d V | EP 0 596 360 A (BAYER) 11. Mai 1994 (1994-05-11) in der Anmeldung erwähnt Seite 2, Zeile 35 -Seite 4, Zeile 7; Ansprüche; Beispiele | 1-3,5,6 |
| A ~ | EP 0 864 575 A (BAYER) 16. September 1998 (1998-09-16) Seite 3, Zeile 41 -Seite 6, Zeile 1 -/ | 1-6 |

| Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen | X Siehe Anhang Patentfamilie |
|---|---|
| Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen 'A' Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist 'E' alteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist 'L' Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft er- | *I* Spatere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Pnoritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht köllidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist *X* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung, die beansprüchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit berühend betrachtet werden *Y* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung, die beansprüchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit berühend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist *&* Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist |
| Datum des Abschlusses der internationalen Recherche | Absendedatum des internationalen Recherchenbenchts |
| 15. Februar 2001 | 23/02/2001 |
| Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde | Bevollmächtigter Bediensteter |
| Europaisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl. Fax. (+31-70) 340-3016 | Bourgonje, A |

1

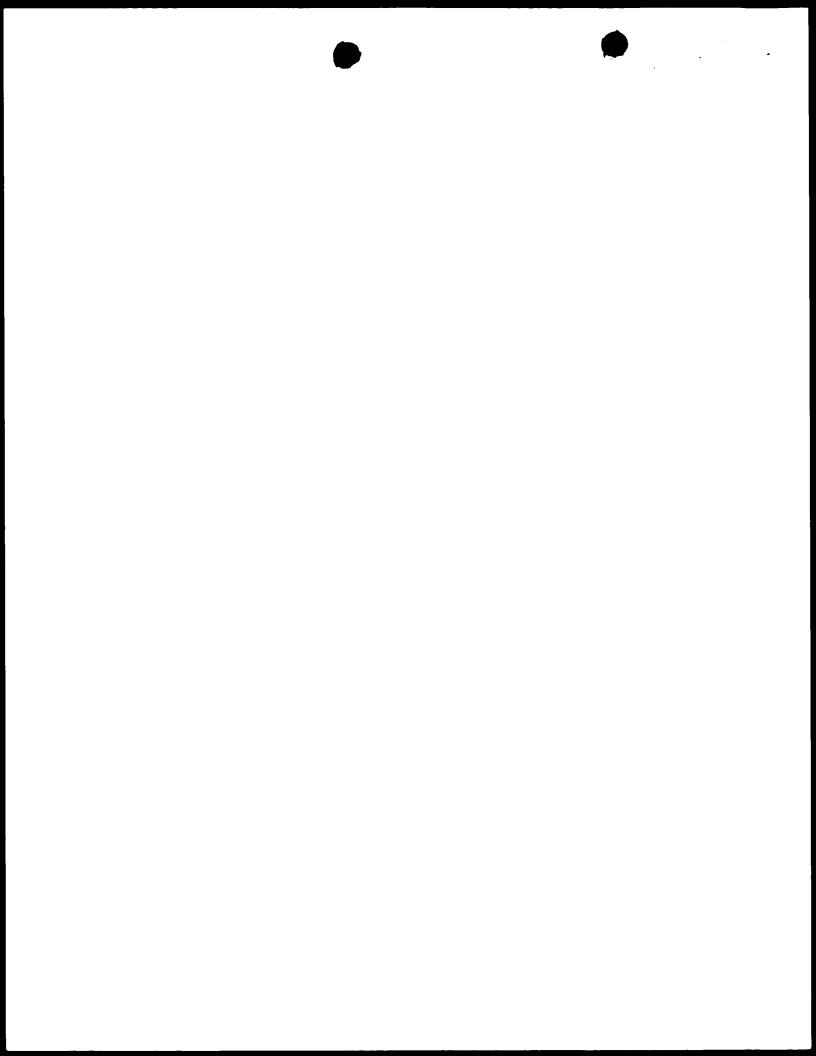




Internationales Aktenzeichen PCT/EP 00/05392

| Bez-Ansergous Bez-Ansergou | | rung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN | panel in Luis Rate Anangah Ne |
|--|-----------|---|--------------------------------|
| 19. November 1997 (1997-11-19) Seite 2. Zeile 19 -Seite 4. Zeile 39; Beispiele EP 0 994 138 A (BAYER) 19. April 2000 (2000-04-19) Seite 3. Zeile 24 -Seite 4. Zeile 42 | Kategone: | Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht komn | nenden Teile Betri Ansprüch Nr |
| 19. April 2000 (2000-04-19) Seite 3, Zeile 24 -Seite 4, Zeile 42 | A i | 19. November 1997 (1997-11-19) Seite 2, Zeile 19 -Seite 4, Zeile 39; | 1.4 |
| | | Seite 2, Zeile 19 -Seite 4, Zeile 39; Beispiele EP 0 994 138 A (BAYER) 19. April 2000 (2000-04-19) Seite 3, Zeile 24 -Seite 4, Zeile 42 | 1-6 |
| | | | |
| | | | |
| 1 | | | |
| | | | |

1



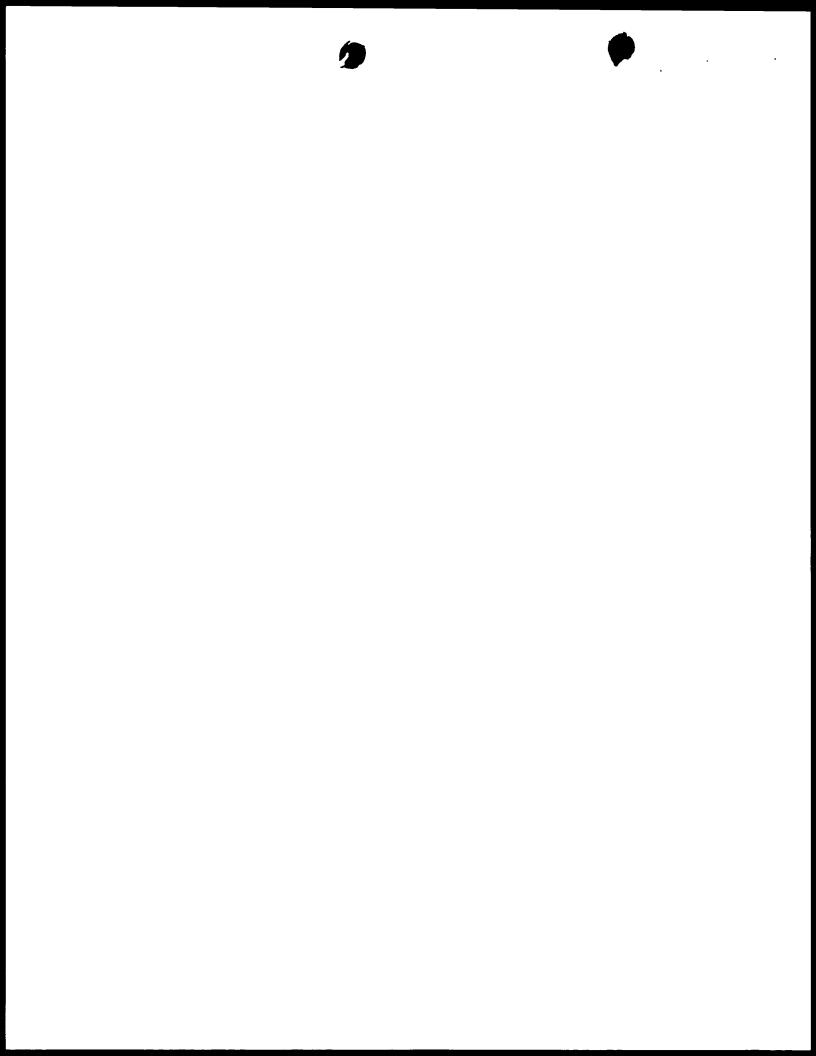


INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No PCT/EP 00/05392

| Patent document cited in search repo | rt | Publication date | | Patent family member(s) | Publication date |
|--------------------------------------|----|------------------|--|--|--|
| EP 831108 | Α | 25-03-1998 | BR JP US | 9704796 A 10204144 A 6001946 A | 22-12-1998 04-08-1998 14-12-1999 |
| EP 596360 | Α | 11-05-1994 | DE AT CA DE ES JP US | 4237468 A 175970 T 2102272 A 59309327 D 2127777 T 6211879 A 5364955 A | 11-05-1994 15-02-1999 07-05-1994 04-03-1999 01-05-1999 02-08-1994 15-11-1994 |
| EP 864575 | Α | 16-09-1998 | US JP | 5908948 A 10251272 A | 01-06-1999 22-09-1998 |
| EP 807649 | A | 19-11-1997 | DE BR CA CN CZ HU JP PL US | 19619538 A 9703158 A 2205106 A 1170009 A 9701478 A 9700897 A 10053637 A 319935 A 5756751 A | 20-11-1997 15-09-1998 15-11-1997 14-01-1998 17-12-1997 28-05-1999 24-02-1998 24-11-1997 26-05-1998 |
| EP 994138 | Α | 19-04-2000 | US JP | 6077902 A 2000119366 A | 20-06-2000 25-0 4- 2000 |



VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS REC'D 0 8 AUG 2001

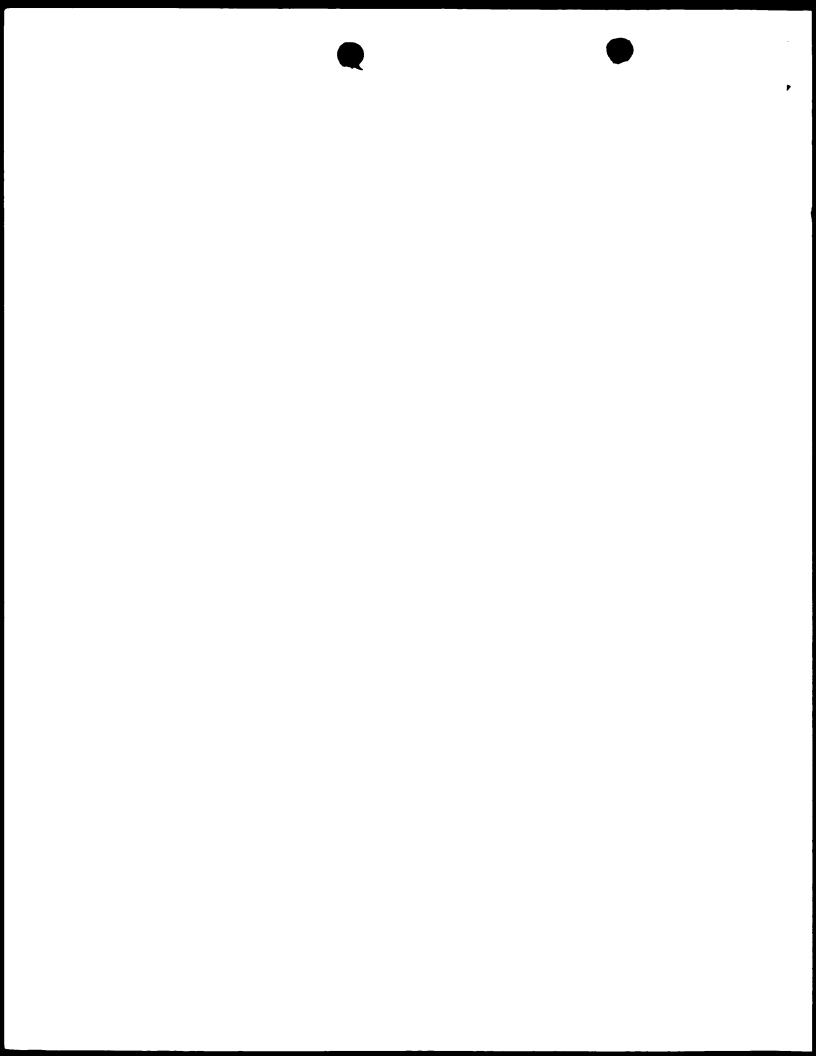
PCT

PCT **WIPO**

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

(Artikel 36 und Regel 70 PCT)

| Aktenzeiche | n des Anmelders oder Anwalts | | siehe Mitteilung über die Übersendung des internationalen | | | |
|---|---|--|--|--|--|--|
| | 90-WO PWE | WEITERES VORGEHEN | vorläufigen Prüfungsberichts (Formblatt PCT/IPEA/416) | | | |
| Internationales Aktenzeichen Internationales Anmelde | | | ag/Monat/Jahr) Prioritätsdatum (Tag/Monat/Tag) | | | |
| PCT/EP0 | 0/05392 | 13/06/2000 | 25/06/1999 | | | |
| Internationa C08G18/0 | le Patentklassifikation (IPK) oder 00 | nationale Klassifikation und IPK | | | | |
| Anmelder BAYER A | KTIENGESELLSCHAFT | | | | | |
| 1. Dieser Behör | r internationale vorläufige Prü de erstellt und wird dem Anm | ifungsbericht wurde von der mit nelder gemäß Artikel 36 übermitt | der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten telt. | | | |
| 2. Diesei | BERICHT umfaßt insgesam | t 6 Blätter einschließlich dieses | s Deckblatts. | | | |
| ur | nd/oder Zeichnungen, die geä | ändert wurden und diesem Berid | s sich um Blätter mit Beschreibungen, Ansprüchen cht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit vor dieser und Abschnitt 607 der Verwaltungsrichtlinien zum PCT). | | | |
| Diese | Anlagen umfassen insgesam | nt Blätter. | | | | |
| 0 5 | r Bericht enthält Angaben zu | folgondon Punkton | | | | |
| 3. Diesei | Bencht enthalt Angaben 20 | loigenden runkten. | | | | |
| । ⊠ Grundlage des Berichts | | S | | | | |
| 11 | Priorität | | and the second s | | | |
| III | | | derische Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit | | | |
| iV | MangeInde Einheitlich | | U. J. N. J. | | | |
| V | Begründete Feststellur aewerblichen Anwendt | ng nach Artikel 35(2) hinsichtlich barkeit; Unterlagen und Erklärur | h der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der ngen zur Stützung dieser Feststellung | | | |
| VI | Bestimmte angeführte | | | | | |
| VII 🛛 Bestimmte Mängel der internationalen Anme | | | | | | |
| VIII | VIII 🖾 Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung | | | | | |
| | | | | | | |
| Datum der I | Einreichung des Antrags | Datum | der Fertigstellung dieses Berichts | | | |
| 18/12/2000 | | | 2001 | | | |
| Name und Postanschrift der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde: | | | mächtigter Bediensteter | | | |
| <u>)</u> | Europäisches Patentamt D-80298 München Tel. +49 89 2399 - 0 Tx: 52365 | Puttin | ns, U | | | |
| | Fax: +49 89 2399 - 4465 | | r. +49 89 2399 8661 | | | |



INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

Internationales Aktenzeichen PCT/EP00/05392

| 1. | Gru | indlage des Berichts | | | | |
|--|---|---|--|--|--|--|
| 1. Hinsichtlich der Bestandteile der internationalen Anmeldung (<i>Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf e Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigefügt, weil sie keine Änderungen enthalten (Regeln 70.16 und 70.13 Beschreibung, Seiten:</i> | | | | | | |
| | 1-1 | 6 ursprüngliche Fassung | | | | |
| | Pat | entansprüche, Nr.: | | | | |
| | 1-6 | ursprüngliche Fassung | | | | |
| | | | | | | |
| | | | | | | |
| 2. | Hinsichtlich der Sprache : Alle vorstehend genannten Bestandteile standen der Behörde in der Sprache, in der die internationale Anmeldung eingereicht worden ist, zur Verfügung oder wurden in dieser eingereicht, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist. | | | | | |
| | | Bestandteile standen der Behörde in der Sprache: zur Verfügung bzw. wurden in dieser Sprache gereicht; dabei handelt es sich um | | | | |
| | | die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen Recherche eingereicht worden ist (nach Regel 23.1(b)). | | | | |
| | | die Veröffentlichungssprache der internationalen Anmeldung (nach Regel 48.3(b)). | | | | |
| | | die Sprache der Übersetzung, die für die Zwecke der internationalen vorläufigen Prüfung eingereicht worden ist (nach Regel 55.2 und/oder 55.3). | | | | |
| 3. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten Nucle internationale vorläufige Prüfung auf der Grundlage des Sequenzpro | | sichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz ist die rnationale vorläufige Prüfung auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das: | | | | |
| | | in der internationalen Anmeldung in schriftlicher Form enthalten ist. | | | | |
| | | zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist. | | | | |
| | | bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist. | | | | |
| | | bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist. | | | | |
| | | Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den | | | | |

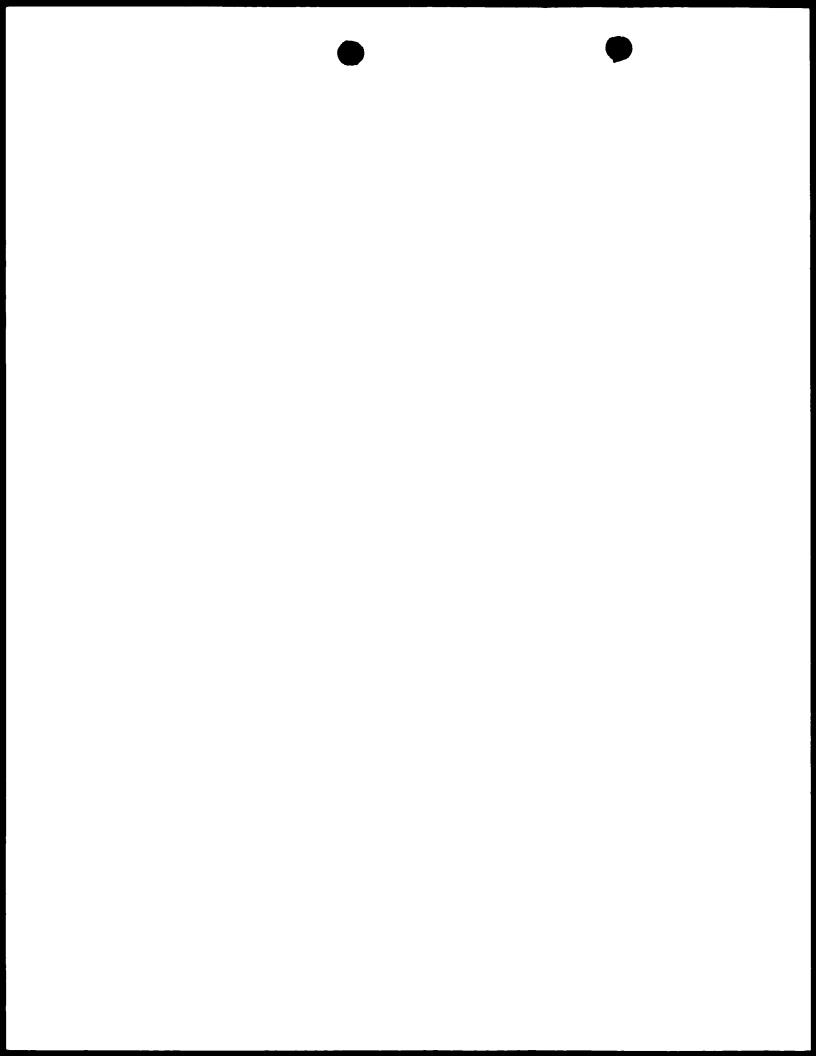
Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.

☐ Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfassten Informationen dem schriftlichen

4. Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:

Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

| Beschreibung. | Seiter |
|---------------|--------|
| Ansprüche, | Nr.: |
| Zeichnungen, | Blatt: |



INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

Internationales Aktenzeichen PCT/EP00/05392

| 5. 🗆 | Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der Änderungen erstellt worden, da diese aus den |
|------|---|
| | angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich |
| | eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2(c)). |

(Auf Ersatzblätter, die solche Änderungen enthalten, ist unter Punkt 1 hinzuweisen;sie sind diesem Bericht beizufügen).

- 6. Etwaige zusätzliche Bemerkungen:
- V. Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung
- 1. Feststellung

Neuheit (N)

Ja: Ansprüche 1-6

Nein: Ansprüche

Erfinderische Tätigkeit (ET)

Ja: Ansprüche 1-6

Nein: Ansprüche

Gewerbliche Anwendbarkeit (GA)

Ja: Ansprüche 1-

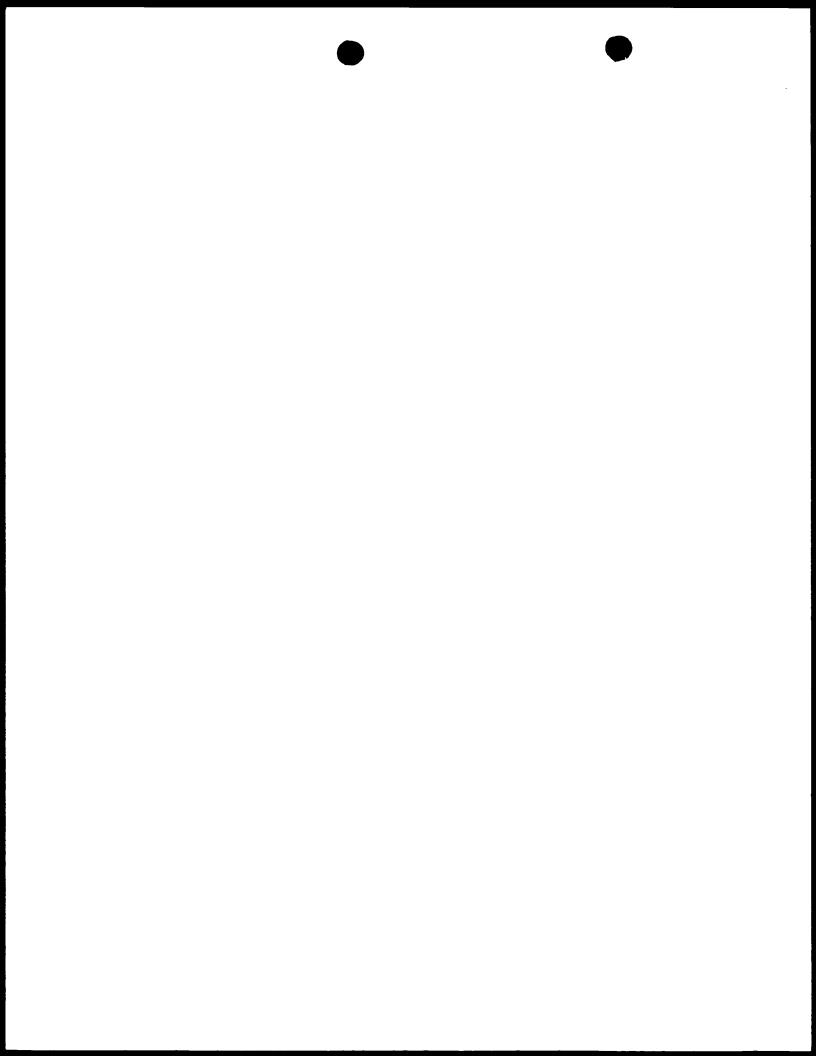
Nein: Ansprüche

- 2. Unterlagen und Erklärungen siehe Beiblatt
- VII. Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung

Es wurde festgestellt, daß die internationale Anmeldung nach Form oder Inhalt folgende Mängel aufweist: siehe Beiblatt

VIII. Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Zur Klarheit der Patentansprüche, der Beschreibung und der Zeichnungen oder zu der Frage, ob die Ansprüche in vollem Umfang durch die Beschreibung gestützt werden, ist folgendes zu bemerken: siehe Beiblatt



INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT - BEIBLATT

Zu Punkt V

Begründete Feststellung nach Regel 66.2(a)(ii) hinsichtlich der Neuheit und der erfinderischen Tätigkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser **Feststellung**

Es wird auf das folgende Dokument verwiesen:

D1: EP-A-0 596 360 (BAYER) 11. Mai 1994 (1994-05-11) in der Anmeldung erwähnt

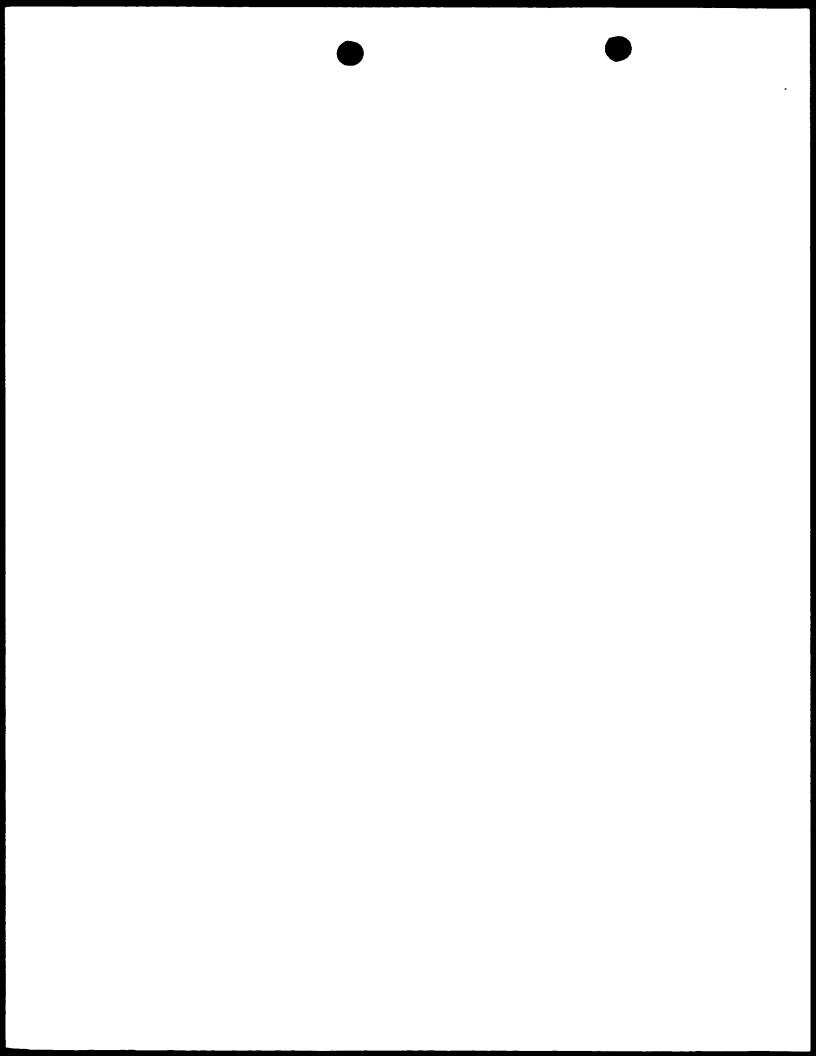
1. Neuheit (Art.33(2) PCT):

Der Gegenstand vorliegender Ansprüche 1 bis 6 ist neu im Vergleich zum Stand der Technik, wie er im Internationalen Recherchenbericht zitiert worden ist. In keinem der dort genannten Dokumente sind nämlich über eine Silanpolykondensation vernetzende Polyurethanmassen bekannt, die A) mindestens ein alkoxysilanfunktionelles Polyurethan, B) mindestens einen basischen Füllstoff, C) mindestens ein Umsetzungsprodukt aus mindestens einem Aminosilan und mindestens einem Malein- oder Fumarsäureester, E) mindestens eine metallorganische Verbindung und F) ggf. weitere Hilfsstoffe enthält.

2. Erfinderische Tätigkeit (Art.33(3) PCT):

Der Gegenstand vorliegender Ansprüche 1 bis 6 beruht auch auf einer erfinderischen Tätigkeit, da weder in D1, das als nächstliegender Stand der Technik betrachtet werden kann, allein noch in Verbindung mit einem anderen, im Internationalen Recherchenbericht genannten Dokument aus den folgenden Gründen ein Hinweis auf die beanspruchten Massen zu entnehmen ist:

D1 offenbart die Herstellung von über eine Silanpolykondensation vernetzende Polyurethanmassen, wobei Polyurethanprepolymere mit den oben unter C) genannten Umsetzungsprodukten umgesetzt werden.



Die in vorliegenden Ansprüchen beanspruchten Massen unterscheiden sich von denjenigen aus D1 bekannten dadurch, daß die unter C) genannten Umsetzungsprodukte mit alkoxysilanfunktionellen Polyurethanen umgesetzt werden anstelle von Polyurethanprepolymeren, die nicht Alkoxysilan-modifiziert sind.

Im Vergleich zur Lehre aus D1 bestand die Aufgabe in vorliegender Anmeldung darin, über eine Silanpolykondensation vernetzende Polyurethanmassen zur Verfügung zu stellen, die eine verbesserte Lagerstabilität aufweisen, ansonsten aber gute mechanische Eigenschaften besitzen und gut am Substrat haften sollen.

Die Anmelderin hat in einigen Beispielen und Vergleichsbeispielen gezeigt, daß die gestellte Aufgabe durch die beanspruchte Massen gelöst werden konnte.

Da aus D1 und aus keinem weiteren Dokument nahegelegt werden konnte, die aus Aminosilan und Malein- oder Fumarsäureestern hergestellten Umsetzungsprodukte direkt mit alkoxysilanfunktionellen Polyurethanen umzusetzen, um zu lagerstabilen über eine Silanpolykondensation vernetzende Polyurethanmassen zu gelangen, die zudem gute mechanische Eigenschaften und eine gute Haftung aufweisen, kann das Beruhen des Anmeldungsgegenstandes auf einer erfinderischen Tätigkeit anerkannt werden.

Zu Punkt VII

Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung

- a) In allen Beispielen muß es stets "Das Produkt wird in eine ..." heißen.
- b) In Beispiel 2 ist die Bezeichnung "Polyurethan aus Beispiel 2" mißverständlich.
- c) In Anspruch 1 hat der Ausdruck "vorzugsweise" und die bevorzugte Ausführungsform, die diesem Ausdruck folgt, keine beschränkende Wirkung auf den Umfang des Anspruchs. Diese bevorzugte Ausführungsform könnte allenfalls zum Gegenstand eines weiteren Unteranspruchs gemacht werden.



INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT - BEIBLATT

Internationales Aktenzeichen PCT/EP00/05392

Zu Punkt VIII

Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Die in Ansprüchen 4 und 5 erwähnte Komponente D findet sich nicht in Anspruch 1 wieder, auf den beide Ansprüche rückbezogen sind. Dies macht beide Ansprüche unklar (Art. 6 PCT).

